

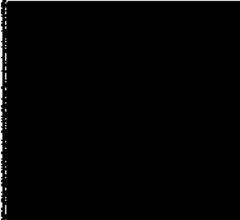



DECKBLATT

	Projekt	FSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	NNNNNNNNNN	NNNNNN	X A A X X	A A	NNNN	NN
EU 125.2	9K		---	HF	RB	0003	00

Titel der Unterlage: Ausbreitung von Radionukliden im oberflächennahen Boden, GSF-Bericht S-788	Seite:	I.
	Stand:	Aug. 1981
Ersteller: GSF	Textnummer:	

Stempelfeld:

PSP-Element TP...9K/212856	zu Plan-Kapitel: 3.9.6	
	PL 	PL 

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.

GESELLSCHAFT FÜR STRAHLEN- UND UMWELTFORSCHUNG MBH MÜNCHEN

Institut für Strahlenschutz

Ausbreitung von Radionukliden im oberflächennahen Boden⁺

von



Neuherberg, August 1981

GSF-Bericht S-788

⁺ Die Untersuchungen wurden im Rahmen eines vom Bundesministerium für Forschung und Technologie geförderten Forschungsprojekts "Sicherheitsstudien Entsorgung" (PSE) durchgeführt.

INHALTSVERZEICHNIS

Zusammenfassung	I
1. Einleitung und Aufgabenstellung	1
2. Ausbreitungsmodelle	3
2.1 Grundlagen	3
2.2 Die analytische Lösung	6
2.3 Das numerische Modell	11
3. Untersuchte Böden	13
3.1 Auswahl	13
3.2 Entnahme der Böden	13
3.3 Ackerböden	17
4. Meßmethoden	18
4.1 Schüttelversuche	18
4.1.1 Definition des Verteilungskoeffizienten	18
4.1.2 Allgemeines Versuchsschema	18
4.1.3 Vorbereitung der Bodenproben und Trockenwertbestimmung	19
4.1.4 Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten von experimentellen Parametern	20
4.1.5 Arbeitsvorschrift	26
4.2 Säulenversuche	27
4.2.1 Die Säulanlage	27
4.2.2 Scanner und Meßtechnik	29
4.2.3 Meßverfahren	34
4.2.4 Auswertung	39
5. Ergebnisse und Diskussion	44
5.1 Schüttelversuche	44
5.1.1 Standardmessungen	44
5.1.2 Einfluß der Fremdionen Kalzium und Kalium	46
5.2 Säulenversuche	49
5.2.1 Die hydrodynamischen Kenngrößen der Säulen	49
5.2.2 Die Retardationsfaktoren	55
5.3 Vergleich der K_d -Werte aus Schüttel- und Säulenversuchen	61
6. Literaturverzeichnis	66

ZUSAMMENFASSUNG

Ziel der Untersuchungen war es, in einem Störfallmodell mit Kontamination der Erdoberfläche für verschiedene oberflächennahe Böden aus der Umgebung des Salzstockes bei Gorleben möglichst realistische Aussagen über die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Radionuklide von Strontium, Jod, Cäsium und Cer zu erhalten.

Zu diesem Zweck wurden für die Radionuklide in Säulenversuchen die Retardationsfaktoren (R_d -Werte) an ungestörten Bodenproben und in Schüttelversuchen (Batch-Verfahren) die Verteilungskoeffizienten (K_d -Werte) an gestörten Bodenproben bestimmt. Die Adsorptionsisothermen der Radionuklide waren wegen der sehr geringen Konzentration (Tracer-Bereich) linear, so daß bei den Säulenversuchen der bekannte lineare Zusammenhang zwischen R_d - und K_d -Werten vorausgesetzt werden konnte. Daher war es möglich, die auf relativ einfache Weise ermittelten K_d -Werte aus Batch-Versuchen mit den K_d -Werten aus den sehr aufwendigen Säulenversuchen zu vergleichen und zu prüfen, ob die Batch-Versuche die Säulenversuche ersetzen können.

Die Auswahl der Böden erfolgte in dem Bestreben, die Profile zu erfassen, die nach bisheriger Erfahrung eine relativ hohe Durchlässigkeit für Wasser und Radionuklide aufweisen und im Standortgebiet weit verbreitet sind. Auf diese Weise erhält man eine konservative Abschätzung der Ausbreitungsgeschwindigkeit. Die ausgewählten Böden waren:

- a) weide- bzw. forstwirtschaftlich genutzte Böden:
 - 1 Ranker auf Flugsand von Trebel
 - 2 Podsol auf Flugsand aus dem Gorlebener Forst
 - 3 Braunerde auf Talsand von Brünkendorf;
- b) landwirtschaftlich genutzte Ackerböden:
 - 4 Podsol aus Gorleben
 - 5 Parabraunerde aus Eschweiler.

Von den Böden 1-3 wurden ca. 1 m lange Bodensäulen (\emptyset 30 cm) möglichst ungestört ausgestochen, ins Labor transportiert und in periodischen Abständen künstlich beregnet. Die hydraulischen Eigenschaften der Bodensäulen (Abstandsgeschwindigkeit, Wassergehalt, Dispersionskoeffizient) wurden durch Verwendung von Tritium-markiertem Regenwasser bestimmt. Dann wurden die

Radionuklide auf die Oberfläche der Säulen aufgebracht und ihre Ausbreitung im Boden mit einem Gammastrahlen-Scanner von außen verfolgt. Aus der Tiefenverteilung der Radionuklide wurden mit Hilfe theoretischer Ausbreitungsmodelle die Retardationsfaktoren der Radionuklide berechnet. Hierzu wurde im Fall eines Zweischichtenbodens ein mathematisch exakt lösbares Ausbreitungsmodell entwickelt, für Böden mit mehreren Schichten wurde ein numerisches Modell, das nach der Methode der finiten Differenzen arbeitet, verwendet. Mit diesen Modellen lassen sich auch längerfristig Vorhersagen über die Ausbreitung von Radionukliden im Boden machen.

An den gleichen Probenahmestellen wurden auch aus den einzelnen Horizonten größere Mengen Bodenmaterial für Schüttelversuche entnommen. Für diese Böden und die Ackerböden 4 und 5 aus Gorleben bzw. Eschweiler wurden nach einem sorgfältig erarbeiteten Standardverfahren die K_d -Werte gemessen. Um den Einfluß der Düngung auf die Sorption der Radionuklide zu erfassen, wurden bei den Ackerböden und den A_h -Horizonten der anderen Böden die K_d -Werte auch bei Zugabe von Kalium- und Kalziumionen gemessen.

Bei den Schüttelversuchen nach dem Standardverfahren wurden folgende Ergebnisse erhalten: Die Nuklide Cs und Ce werden im allgemeinen stärker von den untersuchten Böden sorbiert als Sr und J. Dies gilt insbesondere für die BC- und C-Horizonte, bei denen die K_d -Werte von Sr und J um $1 \text{ cm}^3/\text{g}$ liegen, während die K_d -Werte von Cs und Ce die Größenordnung 100 oder sogar 1000 cm^3/g haben. Bei den O- und A_h -Horizonten ist auch die Sorption von Sr und J höher - die K_d -Werte liegen zwischen 10 und 100 cm^3/g - jedoch meist nicht so hoch wie die von Cs und Ce, deren K_d -Werte mehr als 1000 cm^3/g erreichen (K_d -Ce in den O-Horizonten). Zwischen den drei Probenahmestellen in Gorleben bestehen keine gravierenden Unterschiede, was die Größenordnung der K_d -Werte für ein Nuklid anbelangt.

Bei den Ackerböden ist die Sorption der Radionuklide etwas höher, jedoch in derselben Größenordnung wie bei den A_h -Horizonten. Bei Zugabe der Fremdionen Kalium und Kalzium zeigten sich die stärksten Einflüsse bei Sr, dessen K_d -Wert mit steigender Fremdionenkonzentration sehr stark abnimmt. In ähnlicher Weise wird auch die Sorption von Cs durch Zugabe von K- und in geringerem Ausmaß

durch Ca-Ionen erniedrigt. Erwartungsgemäß wird die Sorption von J, da als Anion vorhanden, weder durch Ca- noch durch K-Ionen wesentlich beeinflusst. Bei Ce ist in erster Linie ein Einfluß von Ca-Ionen zu bemerken, weniger von K-Ionen.

Bei den Säulenversuchen wurden zunächst die hydrodynamischen Parameter der Bodensäulen bestimmt. Die Abstandsgeschwindigkeiten betragen $6,0-9,8 \cdot 10^{-8}$ m/s, die scheinbaren Dispersionskoeffizienten $2,4-8,5 \cdot 10^{-9}$ m²/s, die Dispersionslängen (Dispersivitäten) 0,03-0,09 m und die Wassergehalte 0,13-0,23. Die Retardationsfaktoren R_d , die mit diesen Parametern im Rahmen des numerischen Modells aus den Tiefenverteilungen der Nuklidaktivitäten berechnet wurden, zeigten wie bei den Schüttelversuchen eine relativ starke Sorption von Sr, Cs und Ce in den O-Horizonten, insbesondere von Ce (J konnte nicht gemessen werden, weil auf Grund der kurzen Halbwertszeit des verwendeten ¹³¹J der Untersuchungszeitraum nur 3 Monate betrug und die Jod-Aktivität sich innerhalb dieser Zeit nicht verlagerte). Auch in den A_h -Horizonten war die Sorption der Nuklide Cs und Ce hoch, so daß sie bis zum Ende des Berichtszeitraums nicht in tiefere Horizonte vorgedrungen waren und auch nicht im Sickerwasser der Säulen nachgewiesen werden konnten. Dasselbe gilt für Sr in der Säule aus Gorleben. Bei den mit Sr beaufschlagten Säulen aus Brünkendorf und Trebel trat jedoch im Sickerwasser Nuklidaktivität auf. Die bis zum Ende des Untersuchungszeitraums ausgemessenen Anstiegsflanken der Durchgangskurven stimmen mit den auf Grund der Scanner-Messungen zu erwartenden Kurven qualitativ und quantitativ gut überein.

Vergleicht man die in batch-Versuchen ermittelten K_d -Werte mit den aus den R_d -Werten berechneten K_d -Werten der Säulenversuche, so ergeben sich zum Teil beträchtliche Abweichungen. Allerdings sind die K_d -Werte aus batch-Versuchen im allgemeinen größer als die aus Säulenversuchen, mit Ausnahme der Sr-Werte für die beiden O-Horizonte. Hier könnten infolge der teilweisen Löslichkeit des überwiegend hochpolymeren Materials der O-Horizonte zusätzliche Effekte auftreten. In den reinen Humus-Horizonten (A_h) liegen die batch- K_d -Werte deutlich (Faktor 2-10), in den BC und C-Horizonten relativ gering (maximal Faktor 2) über den Säulen- K_d -Werten. Die batch-Werte täuschen also eine höhere Sorption vor, als sie bei der Wanderung in der Säule stattfindet. Möglicherweise werden bei den batch-Versuchen selbst bei vorsichtigem Schütteln

der Bodensuspension durch Abriebeffekte neue Sorptionszentren freigelegt. Da die K_d - bzw. R_d -Werte aus Säulenversuchen realistischer sind als solche aus Schüttelversuchen, sollten sie, soweit vorhanden, für Ausbreitungsrechnungen verwendet werden. Wenn nur die Größenordnung der Wanderungsgeschwindigkeit der Radionuklide interessiert, werden im allgemeinen auch batch-Versuche ausreichen.

Zusammenfassend lassen sich für die untersuchten Bodenprofile grob pauschaliert folgende Mobilitätsreihen angeben, wobei insbesondere die Säulen-Ergebnisse verwendet wurden:

Ranker (Trebel)	$J > Sr > Ce > Cs$
Podsol (Gorleben)	$J > Cs > Sr > Ce$
Braunerde (Brünkendorf)	$J \gtrsim Sr > Ce \gtrsim Cs$

Ackerböden:

Podsol (Gorleben)	$J > Sr \gg Cs > Ce$
Parabraunerde (Eschweiler)	$J > Sr \gg Ce \gtrsim Cs$

Je nach Horizont können hierbei jedoch noch Unterschiede in der Reihenfolge auftreten, was in der unterschiedlichen Zusammensetzung der Böden sowie ihrer Horizonte, deren Komponenten die einzelnen Radionuklide unterschiedlich stark zu sorbieren vermögen, begründet ist. Da es sich bei der Sorption dieser Nuklide immer nur um Tracermengen handelte, genügen u.U. schon geringe Spuren eines Minerals oder Oxids im Boden, um die Selektivitätsreihe der Sorption zu verändern. So können schon geringe Mengen bestimmter Tonmineralien (z.B. Illit) durch spezielle Fixationsmechanismen die bevorzugte Sorption eines Radionuklids - etwa Cs - bewirken.

1. Einleitung und Aufgabenstellung

Die vorliegenden Untersuchungen wurden im Rahmen des Projekts "Sicherheitsstudien Entsorgung" (PSE), initiiert 1977 vom Bundesminister für Forschung und Technologie, durchgeführt. Ziel des Projekts war es, die Sicherheits- und Risikoaspekte einer nuklearen Entsorgung abzuschätzen.

Wegen der Vielfalt der dabei zu bearbeitenden Probleme wurde das PSE-Projekt in verschiedene Unterprojekte aufgeteilt, die von verschiedenen Forschungseinrichtungen der Bundesrepublik, wie etwa Universitätsinstitute, Großforschungszentren oder Industrielaboratorien bearbeitet werden. Dabei wurde der gesamte Bereich, beginnend mit der Möglichkeit der Abgabe radioaktiver Stoffe bei der Wiederaufarbeitung oder dem Endlager über die Dispersion dieser Substanzen in der Biosphäre bis zu ihrer Aufnahme durch den Menschen.

Die Untersuchungen, die im Institut für Strahlenschutz der GSF durchgeführt wurden, galten dabei insbesondere dem Transport und der Akkumulation von Radionukliden in den oberen Bodenschichten. Sie sollten sich speziell an den in der Umgebung des Salzstocks von Gorleben vorliegenden geologischen und bodenkundlichen Verhältnissen orientieren. Eine möglichst eingehende Kenntnis des Verhaltens von Radionukliden im Boden ist wichtig, da über diesen Ausbreitungspfad freigesetzte Radionuklide über Grund- und Trinkwasser, über Resuspensionsprozesse oder über die Pflanzenaufnahme in die Nahrungskette des Menschen gelangen können.

Realistische Ausbreitungsmodelle für die Ausbreitung radioaktiver Substanzen im Boden liegen bisher nur in Ansätzen vor. Um gesicherte Aussagen über ihre Ausbreitung im Boden machen zu können, sind deshalb standortspezifische Untersuchungen an den interessierenden Böden unumgänglich. Daneben werden aber auch Ausbreitungsmodelle benötigt, um mit Hilfe der experimentellen Daten langfristige Vorhersagen aufstellen zu können, die sich über den experimentell zugänglichen Zeitraum der Laborversuche erstrecken.

Die sich daraus ergebende Aufgabenstellung lautete nach Absprache mit den anderen an diesem Unterprojekt beteiligten Gruppen (Institut für Radiohydrometrie der GSF; Geologisch-Paläontologisches Institut der Universität Kiel; Institut für Angewandte Geologie der FU Berlin; Institut für Wasser-, Boden- und Lufthygiene des BGA Berlin):

- Durchführung möglichst realistischer experimenteller Untersuchungen über die Wanderungsgeschwindigkeit der Radionuklide von Cäsium, Strontium, Jod und Cer in repräsentativen Böden aus der Umgebung Gorlebens. Dabei sollten einerseits die Sorptionseigenschaften dieser Böden für die obigen Radionuklide durch Bestimmung der entsprechenden Verteilungskoeffizienten charakterisiert werden. Zusätzlich sollte jedoch auch die Wanderung der Radionuklide in ungestörten Bodensäulen unter realistischen Umweltbedingungen direkt mittels eines Gammastrahlen-Scanners verfolgt werden.
- Verbesserung von Ausbreitungsmodellen, die mit Hilfe der experimentellen Ergebnisse der Säulenversuche eine langfristige Abschätzung der in den einzelnen Bodenschichten verbleibenden Aktivität der Radionuklide gestatten.

2. Ausbreitungsmodelle

2.1 Grundlagen

Alle Aussagen über die Ausbreitungsgeschwindigkeit von Radionukliden im Boden werden auf die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Wassers bezogen. Da im allgemeinen die Nuklide langsamer wandern als das Wasser, definiert man einen Retardationsfaktor

$$R_d = \frac{\text{Abstandsgeschwindigkeit des Wassers } v_a}{\text{Transportgeschwindigkeit des Nuklids } v_N}$$

Häufig wird die Wanderung der Nuklide dadurch verzögert, daß sie im Boden reversibel sorbiert werden. Dieses Sorptionsverhalten beschreibt man dann mit dem Verteilungskoeffizienten K_d :

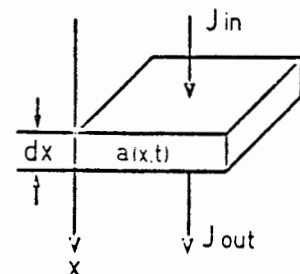
$$K_d = \frac{\text{sorbierte Nuklidmenge pro g Boden}}{\text{gelöste Nuklidmenge pro cm}^3 \text{ Bodenlösung}}$$

Zur Bestimmung der R_d - bzw. K_d -Werte eines Nuklids aus der Aktivitätsverteilung im Boden benötigt man einerseits die hydrodynamischen Größen der Wasserbewegung, insbesondere v_a , andererseits ein theoretisches Ausbreitungsmodell, das den Transport des Nuklids durch den Boden als Funktion der Tiefe und der Zeit beschreibt und die Berechnung des v_N gestattet.

Da in der vorliegenden Untersuchung nur die vertikale Ausbreitung des Nuklids (zum Grundwasser) interessiert, genügt es, den Fall eindimensionaler Ausbreitung (Richtung der x-Achse) zu betrachten. In einem Volumenelement mit dem Querschnitt 1 cm^2 und der Tiefe dx liegt die Aktivität des Nuklids, $a = a(x,t)$ teilweise sorbiert mit der Konzentration q (Ci/g trockenem Boden) und teilweise gelöst mit der Konzentration c (Ci/ml Bodenlösung) vor:

$$a(x,t) = \rho \cdot dx \cdot q + \theta \cdot dx \cdot c$$

ρ ist die Trockenraumdicke des Bodens (g trockener Boden/cm³ Gesamtvolumen) und θ der Wassergehalt des Bodens.



Zwischen sorbierter und gelöster Phase soll Gleichgewicht herrschen. Das Nuklid wird nur in der Bodenlösung transportiert (d.h. im wassererfüllten Porenraum $\theta \cdot dx \cdot 1 \text{ cm}^2$).

Auf Grund der Massenerhaltung ist eine zeitliche Änderung von a nur möglich, wenn sich die pro Zeiteinheit ein- und ausströmenden Mengen von a (die Raten R_{in} und R_{out}) unterscheiden und / oder eine chemische Reaktion stattfindet, hier der radioaktive Zerfall (Zerfallskonstante λ).

$$\frac{\partial a}{\partial t} = R_{in} - R_{out} - \lambda \cdot a$$

Die Raten hängen mit den ein- und ausströmenden Flüssen J_{in} und J_{out} zusammen: $R = \theta \cdot J$ ($\cdot 1 \text{ cm}^2$), also

$$\frac{\rho}{\theta} \cdot \frac{\partial q}{\partial t} + \frac{\partial c}{\partial t} = \frac{J_{in} - J_{out}}{dx} - \lambda \left(\frac{\rho}{\theta} \cdot q + c \right) \quad (1)$$

Da $J = -D_L \cdot \text{grad } c + v_a \cdot c$ ist (D_L = longitudinale Dispersionskoeffizient), ergibt sich

$$\frac{\rho}{\theta} \cdot \frac{\partial q}{\partial t} + \frac{\partial c}{\partial t} = D_L \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - v_a \cdot \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda \left(\frac{\rho}{\theta} \cdot q + c \right) \quad (2)$$

Dies ist die bekannte eindimensionale Transportgleichung, die von vielen Autoren als Ausgangspunkt ihrer Berechnungen benutzt wird (siehe z.B. [redacted] et al. 1974, [redacted] et al. 1977, [redacted] et al. 1979).

Gl.2 ist unter bestimmten Voraussetzungen analytisch lösbar. Eine Lösung wird im Abschnitt 2.2 vorgestellt. Im allgemeinen Fall ist Gl.2 nur numerisch lösbar, d.h. im Rahmen eines multi-compartment Modells, in dem die compartments die Dicke dx haben, also die Integration über den Raum wegfällt und die Integration über die Zeit nach einem numerischen Verfahren durchgeführt wird (siehe 2.3). Nach Möglichkeit sollte beides, analytische Lösung und numerisches Modell, vorliegen, damit die Ergebnisse der numerischen Rechnungen im Spezialfall der analytischen Lösung überprüfbar sind.

Da die Nuklidkonzentrationen in der vorliegenden Untersuchung

stets im Tracer-Bereich (weit unterhalb der Sättigung) waren, kann ein linearer Zusammenhang zwischen adsorbierter und gelöster Nuklidmenge vorausgesetzt werden:

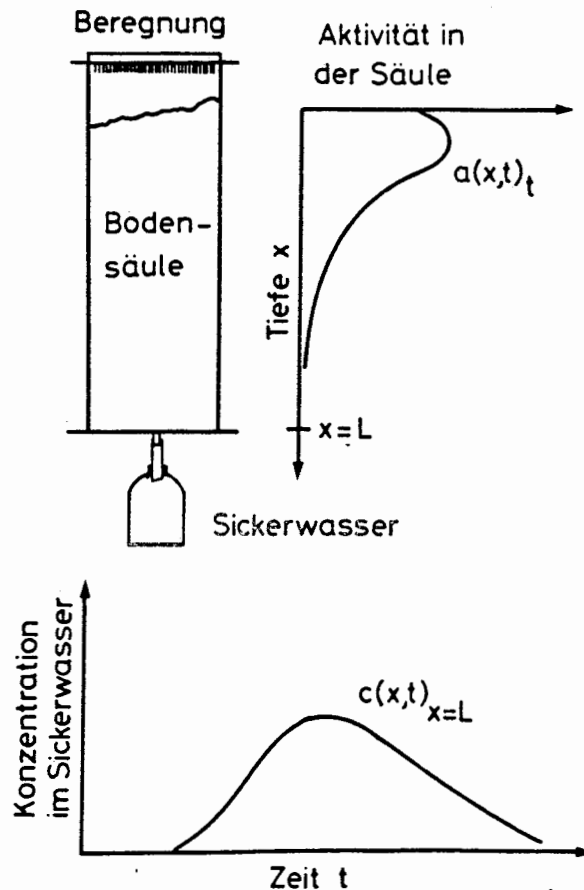
$$q = K_d \cdot c \quad (3)$$

Damit wird

$$R_d = 1 + \frac{\rho}{\theta} K_d \quad (4)$$

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{D_L}{R_d} \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - \frac{v_a}{R_d} \cdot \frac{\partial c}{\partial x} - \lambda \cdot c \quad (5)$$

Die (analytische oder numerische) Lösung $c = c(x,t)$ von Gl.5 erlaubt wegen (3) die Berechnung von $q(x,t)$ und damit der gesamten Nuklidmenge $a(x,t)$. Wird in einem Experiment oder in der Natur (Bomben-Fallout) an einer Bodenprobe die Aktivitätsverteilung eines Nuklids (Tiefenverteilung $a(x,t)$ zu verschiedenen Zeiten t) oder die Nuklidkonzentration in der ausfließenden Bodenlösung (Durchbruchskurve $c(x,t)$ an einem bestimmten



Ort x) gemessen, so können durch Anpassung der theoretischen an die gemessenen Werte die Wanderungsgeschwindigkeiten des Nuklids in dem betreffenden Boden ermittelt werden. Darüber hinaus lassen sich mit Hilfe des Ausbreitungsmodells langfristige Vorhersagen über das Verhalten des Radionuklids im Boden machen.

2.2 Die analytische Lösung

Bei der hier vorgestellten analytischen Lösung der Transportgleichung (5) wird von einem Boden ausgegangen, der aus zwei in sich homogenen Schichten besteht, wobei angenommen wird, daß die Nuklide sich nach der Aufgabe in der ersten, der "Oberflächen"-Schicht, gleichmäßig verteilen, bevor sie in die zweite eindringen.

Folgende Parameter des Systems werden berücksichtigt:

- Zufuhr rate der Radionuklide nach einer beliebigen Zeitfunktion, die durch eine Stufenfunktion so genau wie erforderlich angenähert wird;
- Zufuhr rate der Radionuklide in Form eines oder mehrerer Impulse beliebiger Höhe und nach beliebigen Zeitabständen;
- radioaktiver Zerfall des Nuklids;
- Sorption der Radionuklide, wobei die Sorptionseigenschaften der beiden Bodenschichten verschieden sein können;
- Anwesenheit von Rissen oder vertikalen Kanälen im Boden.

Um die Zeitabhängigkeit der Zufuhr rate der Radionuklide auf die Bodenoberfläche möglichst allgemein zu halten, wurde für sie eine Treppenfunktion, wie in Abb. 1 gezeigt, gewählt. Hierbei wird die Zeitabhängigkeit der Aufgabengeschwindigkeit der Radionuklide als eine Folge von konstanten Werten $F_0, F_1 \dots F_n$ ausgedrückt, die während der entsprechenden, beliebig großen Zeitintervalle $t_1 - t_0; t_2 - t_1; \dots t_{n+1} - t_n$ auf die Bodenoberfläche gelangen. Da hierbei auch die Zeitintervalle verschieden groß sein können, läßt sich auf diese Weise jede beobachtete oder angenommene Zeitabhängigkeit der Zufuhr rate mit beliebiger Genauigkeit approximieren.

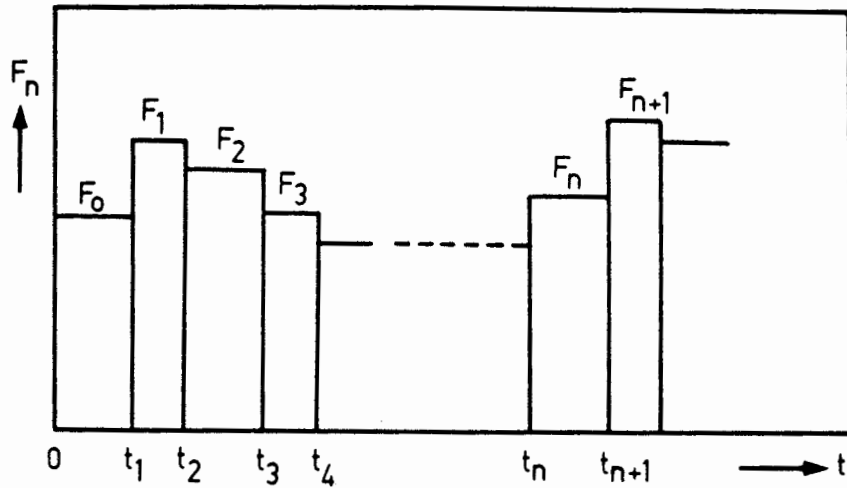


Abb. 1 Zeitabhängigkeit der Zufuhrrahte F_n der Radionuklide auf die Bodenoberfläche als Funktion der Zeit t

Darüber hinaus sind aber auch Situationen, insbesondere bei Unfällen, denkbar, bei denen eine bestimmte Menge an Radionukliden auf den Boden nur während eines sehr kurzen Zeitintervalls auftreffen. In diesem Fall ist es einfacher, die Zeitabhängigkeit der Oberflächenzufuhr mit einer Impulsfunktion zu beschreiben, wie etwa der DIRACschen Delta-Funktion. Im allgemeinen Fall können die Radionuklide hierbei auch als eine Folge verschieden großer Impulse w_n nach beliebigen Zeitintervallen t_n auf den Boden gelangen. Dies ist in Abb. 2 veranschaulicht.

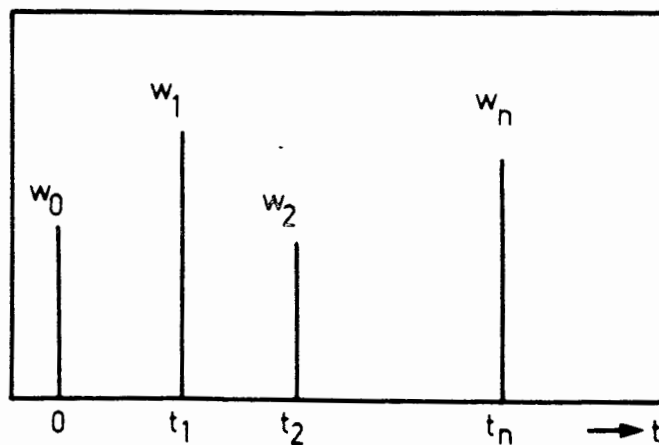


Abb. 2 Zufuhr der Radionuklide auf die Bodenoberfläche gemäß einer Impulsfunktion

Für beide Fälle werden im folgenden analytische Lösungen für die Ausbreitung der Radionuklide im Boden angegeben, wobei Einzelheiten dem GSF-Bericht S-527: Kurt BUNZL "Transport and Accumulation of Radionuclides in the Soil - A Kinetic Model" zu entnehmen sind.

Erfolgt die Zufuhr der Radionuklide gemäß der in Abb. 1 gezeigten Treppenfunktion, so gilt für die Konzentration c der Radionuklide als Funktion von der Zeit t und der Tiefe x :

$$c(t, x) = \frac{R}{R_{s,d}} e^{\frac{v \cdot x}{2D_b}} \left\{ \sum_{n=0}^n F_n e^{-\lambda(t-t_n)} [\phi(\tau=t_n, \sigma=M) - \phi(\tau=t_n, \sigma=E)] - F_n e^{-\lambda(t-t_{n+1})} [\phi(\tau=t_{n+1}, \sigma=M) - \phi(\tau=t_{n+1}, \sigma=E)] \right\} \quad (6)$$

wobei $\phi(\tau, \sigma)$ gegeben ist durch

$$\begin{aligned} \phi(\tau, t, x, \sigma) &= \mathcal{L}^{-1} \left\{ e^{-\tau p} \cdot \frac{e^{-q'x}}{(p'-\alpha)(q'-\sigma)} \right\} = \\ &= H(t-\tau) e^{-a(t-\tau)} \left\{ \frac{1}{2} \cdot e^{\alpha(t-\tau)} \left\{ \frac{\sqrt{D_b''}}{\sqrt{\alpha-\sigma} \sqrt{D_b''}} e^{-x\sqrt{\alpha/D_b''}} \operatorname{erfc} \left[\frac{x}{2\sqrt{D_b''(t-\tau)}} - \sqrt{\alpha(t-\tau)} \right] + \right. \right. \\ &+ \frac{\sqrt{D_b''}}{-\sqrt{\alpha-\sigma} \sqrt{D_b''}} e^{x\sqrt{\alpha/D_b''}} \operatorname{erfc} \left[\frac{x}{2\sqrt{D_b''(t-\tau)}} + \sqrt{\alpha(t-\tau)} \right] \left. \right\} + \\ &+ \frac{\sigma D_b''}{\sigma^2 D_b'' - \alpha} e^{-\sigma x + \sigma^2 D_b''(t-\tau)} \operatorname{erfc} \left[\frac{x}{2\sqrt{D_b''(t-\tau)}} - \sigma \sqrt{D_b''(t-\tau)} \right] \left. \right\}; \quad (7) \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned}
 a &= u''^2 / 4D_b'' \\
 h &= 1/\ell \\
 \alpha &= \frac{u''^2}{4D_b''} + \lambda \\
 R &= -1/\sqrt{(D_s'h + u'')^2 - 4 \frac{K_b}{K_s} D_b'' u'' h} \\
 M &= -\frac{1}{2D_h''} \left\{ D_s'h + \sqrt{(D_s'h + u'')^2 - 4 \frac{K_b}{K_s} D_b'' u'' h} \right\} \\
 E &= \frac{1}{2D_b''} \left\{ \sqrt{(D_s'h + u'')^2 - 4 \frac{K_b}{K_s} D_b'' u'' h} - D_s'h \right\}
 \end{aligned}$$

$H(t-\tau)$ ist die Heavyside Funktion, gegeben durch

$$H(t-\tau) = \begin{cases} 0 & \text{für } t < \tau \\ 1 & \text{für } t > \tau \end{cases}$$

$\operatorname{erfc} y = 1 - \operatorname{erf} y$, wobei $\operatorname{erf} y$ die Fehlerfunktion ist.

D_L , der scheinbare Diffusions/Dispersionskoeffizient, ist

$$D_L = \theta \cdot \gamma \cdot D_d + L_D \cdot v_a \quad (8)$$

wobei γ der Labyrinthfaktor, D_d der Diffusionskoeffizient des Radionuklids im Wasser und L_D die Dispersionslänge bedeuten.

Die Größen in der Oberflächenschicht des Bodens der Dicke ℓ sind durch den Index s und diejenigen im Inneren des Bodens durch den Index b unterschieden. Dabei gelten folgende Abkürzungen:

$$D_b'' = D_b / R_{b,d}; \quad D_s' = D_s / R_{s,d}; \quad u' = v_a / R_{s,d} \quad \text{und} \quad u'' = v_a / R_{b,d}$$

λ ist die Zerfallskonstante des Radionuklids.

Erfolgt die Zugabe des Radionuklids auf die Bodenoberfläche in einer Impulsfolge gemäß Abbildung 2, so erhält man für die Ausbreitung des Radionuklids

$$c(x,t) = \frac{R}{R_{s,d}} e^{\left(\frac{v \cdot x}{2D_b}\right)} \sum_{n=0}^n W_n e^{-\lambda(t-t_n)} \Psi(\tau=t_n, \sigma=M) - \Psi(\tau=t_n, \sigma=E) \quad (9)$$

wobei

$$\begin{aligned} \Psi(t,x,\tau,\sigma) &= L^{-1} \left\{ e^{-\tau p} \cdot \frac{e^{-q'x}}{q'-\sigma} \right\} = \\ &= H(t-\tau) e^{-a(t-\tau)} \left\{ \sqrt{\frac{D_b''}{\pi(t-\tau)}} e^{-x^2/4D_b''(t-\tau)} + \right. \\ &\quad \left. + \sigma D_b'' e^{-\sigma x + D_b'' \sigma^2 (t-\tau)} \cdot \operatorname{erfc} \left[\frac{x}{2\sqrt{D_b''(t-\tau)}} - \sigma \sqrt{D_b''(t-\tau)} \right] \right\} \end{aligned}$$

Ergänzend ist noch hinzuzufügen, daß die in dem Ausbreitungsmodell gemachte Annahme eines homogenen Bodens mit konstantem Verteilungskoeffizienten (und damit Retardationsfaktor) für viele Überlegungen keine Einschränkung darstellt. Besteht nämlich der Boden aus mehreren (n) Schichten mit den Dicken l_i und den zugehörigen Retardationsfaktoren $R_{d,i}$, so kann die Konzentration der Radionuklide im Ausfluß der Säule mit einem mittleren Retardationsfaktor \bar{R}_d gemäß

$$\bar{R}_d = \frac{1}{\sum l_i} \cdot \sum_{i=1}^n R_{d,i} \cdot l_i$$

beschrieben werden ([redacted] et al. 1977).

Diese Mittelwertbildung der Retardationsfaktoren über die einzelnen Bodenschichten stellt dabei - wie [redacted] et al. gezeigt haben - keine Näherung dar, sondern ergibt identische Resultate wie eine exakte Lösung des Mehrschichtenproblems. Ebenso konnte gezeigt werden, daß bei Vorliegen von ungestättigtem Wasserfluß und verschiedenen Wassergehalten in den einzelnen Schichten des Bodens mit einem mittleren Wassergehalt der ganzen Bodensäule gerechnet werden darf.

2.3 Das numerische Modell

Bei der numerischen Lösung der Transportgleichung wird der Boden in N Schichten der Dicke DX aufgeteilt, wie es z.B. von [redacted] et al. (1974) ausführlich beschrieben wird. DX muß klein gegen die gesamte betrachtete Tiefe des Bodens sein, so daß man voraussetzen kann, daß alle Größen und Parameter in einer Schicht konstant sind.

Das hier benutzte Modell geht von der Transportgleichung in der Form von Gl.(1) aus. Mit $q = K_d \cdot c$ und $R_d = 1 + K_d \cdot \rho / \theta$ ist für jede Schicht i die Gleichung zu lösen

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{J_{i,in} - J_{i,out}}{R_{d,i} \cdot DX} - \lambda \cdot C_i \quad i=1, \dots, N \quad (10)$$

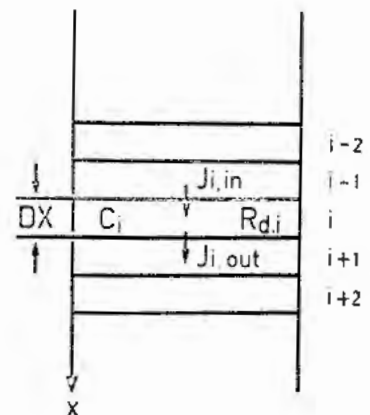
Diese N Gleichungen haben die Anfangsbedingungen

$$C_i(t=0) = 0 \quad i=1, \dots, N$$

und die Randbedingungen

$$J_{i,in} = J_{i-1,out} \quad i=2, \dots, N$$

$$\text{und } J_{1,in} = \begin{cases} v_a \cdot c_0 & \text{für } 0 \leq t \leq t_0 \\ 0 & \text{für } t > t_0 \end{cases}$$



Die Nuklidkonzentration in der Aufgabelösung, c_0 , kann auch mit der Zeit variieren, da die Inputfunktion als Tabelle eingegeben wird.

Die Integration

$$C_i = \int_0^t DC_i dt \quad DC_i = \frac{\partial C_i}{\partial t}$$

muß nach einem numerischen Verfahren, z.B. Runge-Kutta, erfolgen.

Für die Flüsse J_i wurde, wie von FRISSEL et al. (1974) vorgeschlagen,

$$J_i = D_L \frac{C_i - C_{i+1}}{DX} + v_a \frac{C_i + C_{i+1}}{2} \quad i = 2, \dots, N-1$$

und $J_N = v_a (1.5 C_N - 0.5 C_{N-1})$

gesetzt (J_1 siehe oben). Damit wird

$$DC_i = \left[\frac{D_L}{DX} \cdot (C_{i-1} - 2 \cdot C_i + C_{i+1}) + v_a \cdot (C_{i-1} - C_{i+1}) / 2 \right] / (R_{d,i} \cdot DX) - \lambda \cdot C_i$$

$i=2, \dots, N-1$

Hierbei wurde angenommen, daß die hydrodynamischen Parameter v_a , D_L und θ für alle Schichten gleich sind. Selbstverständlich können diese Parameter auch von Schicht zu Schicht variieren, sie müssen dann nur, wie die Nuklidaufgabe, tabellarisch eingegeben werden.

Nach Integration der N Gleichungen (10) erhält man N Werte R_d (vorausgesetzt, v_a ist bekannt; ist dies nicht der Fall wie z.B. häufig bei Fallout-Berechnungen, so erhält man N Transportgeschwindigkeiten $v_N = v_a / R_d$, auch "Migrationsraten" genannt). Von diesen N Werten sind im allgemeinen jedoch nur wenige verschieden, weil mehrere Schichten einen Bodenhorizont bilden, in dem der R_d -Wert als konstant anzunehmen ist.

3. Untersuchte Böden

3.1 Auswahl

Bei einer Geländebegehung am 28./29.11.77, zusammen mit Geologen der Universität Berlin () und der Universität Kiel () sowie einem Bodenkundler des zuständigen Landesamts wurden durch Untersuchung des Geländes in der Umgebung des Salzstockes bei Gorleben (geplanter Standort des Endlagers) drei standortspezifische Böden ausgewählt. Die Bodentypen Braunerde, Ranker und Podsol wurden aufgrund ihrer Vorkommenshäufigkeit und guten Durchlässigkeit für Sickerwasser, um bei der Wanderung von Nukliden auf der sicheren Seite zu liegen, ausgewählt.

Durch Aufnahme von Bodenproben mittels Pürkhauer wurden geeigneten Probenahmeorte in Brünkendorf (Braunerde) und Trebel (Ranker) jeweils in der Nähe von Sandgruben festgelegt. Ein geeigneter Probenahmeort für den Podsol konnte erst im Mai 1978 auf einem von der DWK erworbenen Gelände festgelegt werden. Die Lage der Probenahmestellen und des geplanten Standorts ist in Abbildung 3 dargestellt.

3.2 Entnahme der Böden

Die Entnahme der gestörten Bodenproben zur Bestimmung der Verteilungskoeffizienten in Batchversuchen erfolgte am 28.-29.11.77 in Brünkendorf und Trebel und am 8.-10.5.78 in Gorleben. Die ungestörten Böden, an denen unter möglichst natürlichen Bedingungen die Sickerwasserbewegung und die Wanderung von Radionukliden untersucht werden sollte, wurden am 22. 28.1.78 (Brünkendorf, Trebel) und 8.-10.5.78 (Gorleben) entnommen. Zur Entnahme wurden PVC-Rohre, $\varnothing = 30$ cm, Länge 100 cm, Wandstärke 0,8 bzw. 1 cm verwendet. Die Rohre wurden am unteren Rand angeschärft und hydraulisch (zur Vermeidung von Randstörungen) in den Boden gepreßt. Dazu wurde von (Univ. Kiel) eine geeignete Apparatur entwickelt,

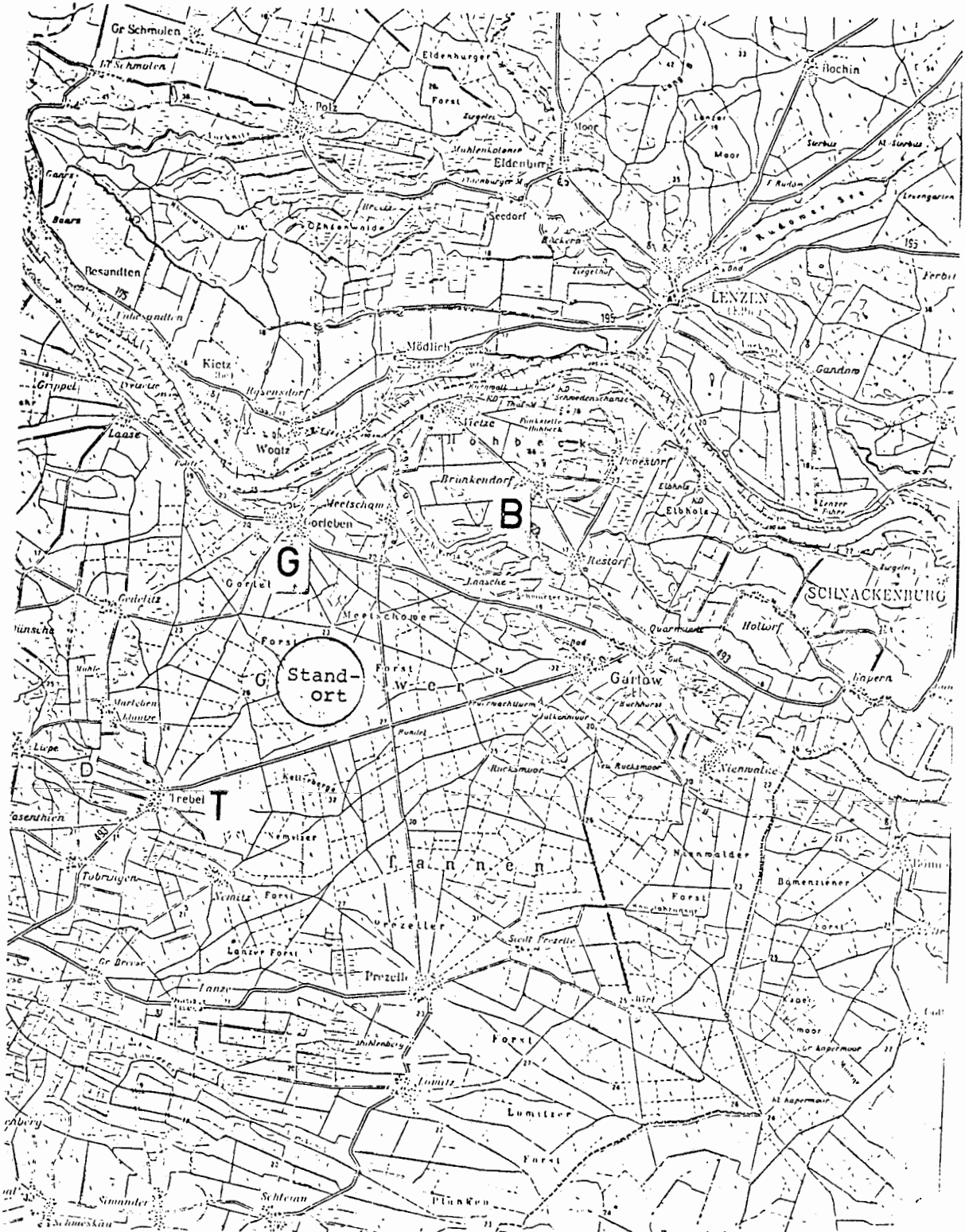


Abb.3 Probenahmeorte Brückendorf (B), Gorleben (G) und Trebel (T) in der Nähe des Salzstockes bei Gorleben (vorgesehener Standort des Endlagers)

die in Abbildung 4 zu sehen ist. Sie besteht aus einem Gestell aus massivem Winkeleisen, das mit 4 Erdankern im Boden befestigt wird. Die Erdanker (Länge 1 m) werden mit einem motorgetriebenen Bohrgerät in den Boden gebohrt. Die Rohre werden in einer Führung gehalten und mit einem hydraulischen Stempel in den Boden gepresst. Die Lysimeter (PVC-Rohr und Boden) wurden danach ausgegraben und an beiden Enden Platten mit Hilfe von 2 langen Zwingen angebracht. Zur Vermeidung von Störungen wurden die Lysimeter stehend in einer Halterung nach München transportiert.

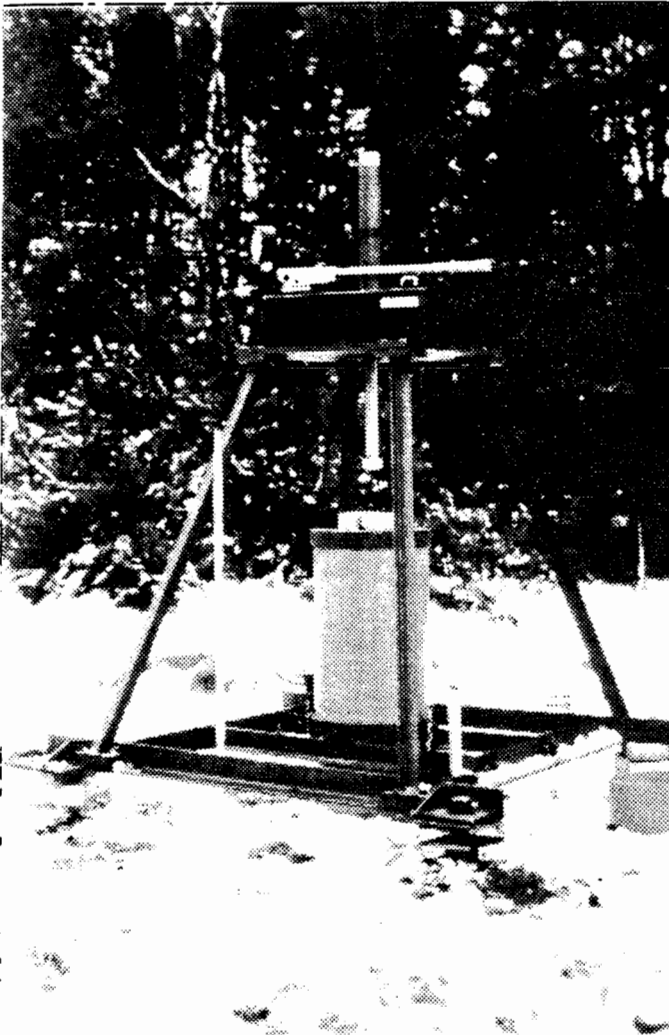


Abb.4
Probenahmegerät mit hydraulischem Stempel zum Einpressen der Rohre

3.3 Beschreibung der Bodentypen

Es wurden 8 Bodenmonolithe entnommen, die sich wie folgt auf die einzelnen Probenahmeorte verteilen:

BRÜNKENDORF, Kr. Lüchow-Dannenberg, Sandgrube Schenk,
am Ortsausgang, Straße nach Vietze

Braunerde auf fluviatilem Sand, der Kiese und Steine enthält.
Stellenweise tritt Pseudovergleyung über schluffig bis tonigen
Lagen auf (B3, B4 im BC-Horizont).

Bodenprofile:

<u>B2:</u>	0 - 7 cm	A _h	<u>B3:</u>	0 - 9 cm	A _h	<u>B4:</u>	0 - 7 cm	A _h
	7 - 36 cm	B _v		9 - 44 cm	B _v		7 - 42 cm	B _v
	> 36 cm	BC		> 44 cm	BC		> 42 cm	BC

TREBEL, Kr. Lüchow-Dannenberg, Sandgrube hinter der Post

Ranker auf Flugsand, schwach podsoliert

Bodenprofile:

<u>T6:</u>	0 - 2 cm	O ₁	<u>T7:</u>	0 - 3 cm	O ₁
	2 - 4 cm	O _f		3 - 5 cm	O _f
	4 - 13 cm	(E)A _h		5 - 17 cm	(E)A _h
	> 13 cm	C		> 17 cm	C

GORLEBEN, Kr. Lüchow-Dannenberg, nordwestlich der Straße
nach Gedelitz

Podsol auf Flugsand, schwach mittelsandig und schluffig

Bodenprofile:

<u>G1:</u>	0 - 4 cm	O	<u>G2:</u>	0 - 3 cm	O	<u>G4:</u>	0 - 2 cm	O
	4 - 22 cm	(E)A _h		3 - 23 cm	(E)A _h		2 - 20 cm	(E)A _h
	22-30 cm	E		22-29 cm	E		20-24 cm	E
	30-33 cm	B _{h,fe}		29-32 cm	B _{h,fe}		24-27 cm	B _{h,fe}
	33-46 cm	B _{fe}		32-48 cm	B _{fe}		27-41 cm	B _{fe}
	>46 cm	BC		>48 cm	BC		>41 cm	BC

3.4 Ackerböden

Zur Ergänzung des Untersuchungsprogramms im Hinblick auf landwirtschaftlich genutzte Böden wurden auch an 2 Ackerböden Schüttelversuche durchgeführt. Die Ackerböden stammten aus Gorleben bzw. aus Eschweiler. Ihre chemischen und physikalischen Daten, die freundlicherweise von der Arbeitsgruppe "Radioagronomie der Kernforschungsanlage Jülich" ermittelt wurden, sind in nachfolgender Tabelle angegeben.

Tabelle 1 Chemische und physikalische Daten der Ackerböden

Herkunft Bodentyp Horizont	Gorleben Eisenhumus-Podsol Ap	Eschweiler Parabraunerde Ap
pH _{CaCl₂}	4.7	5.9
Organischer C (%)	1.1	1.4
Gesamt-N (%)	0.1	0.1
Ton (%)	2.6	12.0
Schluff (%)	2.9	28.4
Feinsand (%)	34.3	58.3
T-Wert (mval/100 g)	6.2	11.2
S-Wert (mval/100 g)	2.4	12.8
Ca (mval/100 g) ¹⁾	2.0	11.8
K (mval/100 g) ¹⁾	0.24	0.8
Strontium (mg/kg)	5.7 ± 0.1	13.0 ± 0.4
Caesium (mg/kg) ²⁾	0.79 ± 0.04	2.3 ± 0.1
Kobalt (mg/kg) ²⁾	17.8 ± 0.03	31.5 ± 0.2
Mangan (mg/kg) ²⁾	152 ± 11	636 ± 76

¹⁾Nach Mehlich im Inst. f. Bodenkunde der Universität Bonn

²⁾Mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse Zentralabteilung Chemische Analyse der KFA Jülich GmbH

4. Meßmethoden

Sowohl die Schüttel- als auch die Säulenversuche wurden mit folgenden Radionukliden durchgeführt:

Strontium: ^{85}Sr als SrCl_2
Jod: ^{131}J als NaJ
Cäsium: ^{137}Cs als CsCl
Cer: ^{144}Ce als CeCl_3 im Gleichgewicht mit CeCl_4

4.1 Schüttelversuche

4.1.1 Definition des Verteilungskoeffizienten

Der Verteilungskoeffizient K_d ist definiert als das sich im thermodynamischen Gleichgewicht einstellende Verhältnis zwischen der an der Bodenprobe sorbierten Menge eines Radionuklids zu der in der Lösung verbliebenen, jeweils bezogen auf die Massen bzw. Volumeneinheit.

$$K_d = \frac{\bar{A}/m}{A/V} = \frac{q}{c}$$

\bar{A}, A = Aktivität des sorbierten Radionuklids in Boden bzw. Lösung
 m = Masse des trockenen Bodens in g,
 V = Lösungsvolumen in ml.

4.1.2 Allgemeines Versuchsschema

Die zu untersuchende Bodenprobe wird zunächst luftgetrocknet, gesiebt (2 x 2 mm) und gründlich gemischt. Anschließend werden m_g Gramm für den eigentlichen Sorptionsversuch, sowie m_1 Gramm zur Bestimmung des Trockengewichts abgewogen. Die Menge m_1 der Bodenprobe wird im Trockenschrank bei 105 C 48 Stunden lang getrocknet und erneut gewogen. Ihr Gewicht sei dann m_0 Gramm. Die Menge m_g der Bodenprobe wird in ein Zentrifugenglas aus PVC gegeben, mit V ml Lösung versetzt und bis zur Erreichung des Wassersorptionsgleichgewichts in der Schüttelmaschine geschüttelt. Zu dieser Mischung werden nun A_0 Ci des zu untersuchenden Radionuklides mit einer Mikroliterpipette (z.B. Eppendorf) gegeben und die Mischung weiter geschüttelt. Nach Erreichen des Sorptionsgleichgewichts wird die überstehende

Lösung abzentrifugiert und die in der Lösung verbliebene Aktivität A des Radionuklids bestimmt. Beachtet man, daß für die im Boden sorbierte Aktivität $\bar{A} = A_0 - A$ gilt, so ergibt sich

$$K_d = \frac{V}{m} \left(\frac{A_0}{A} - 1 \right)$$

mit Trockengewicht $m = m_g \cdot \frac{m_0}{m_1}$.

m_g = eingewogene Masse, m_0 = Trockenmasse von m_1 .

Da aus der Literatur bekannt ist, daß bei zu großen Verhältnissen V/m von Wasser zu Bodenprobe eine unerwünschte Auflösung einzelner Bodenbestandteile eintreten kann, ist V/m so zu wählen, daß m einerseits noch genügend groß ist, um eine repräsentative Probe zu gewährleisten (m etwa 10 g), V andererseits aber noch groß genug ist, um beim Schütteln des Systems Boden/Lösung eine gute Durchmischung zu erzielen und nach Abzentrifugieren noch einige ml überstehende Lösung für die Messung der Aktivität anfällt.

Für die Durchführung unserer Versuche wurden die Werte $m = 10$ g, $V = 25$ ml in Anlehnung an Untersuchungen anderer Autoren, z.B. [REDACTED] et al. (1977), und die Aktivität $A_0 \approx 200$ nCi aus meßtechnischen Gesichtspunkten gewählt. Der Einfluß dieser Größe auf den Verteilungskoeffizienten wurde überprüft (s. 4.1.4). Eine ausführliche Darstellung der praktischen Durchführung der K_d -Wert-Bestimmung befindet sich in 4.1.5.

4.1.3 Vorbereitung der Bodenproben und Trockenwertbestimmung

- a) Die naturfeuchten Bodenhorizonte wurden bei der von der Laborklimaanlage eingestellten relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 50-60% in offenen Gefäßen 72h getrocknet und anschließend mittels eines 2 mm Normsieves von Wurzelbestandteilen und Kies getrennt. Siebfraktionen über 2 mm traten nur beim B_v -Horizont von Brünkendorf in sehr geringem Ausmaß auf. Sie reichten jedoch für Batch-Versuche nicht aus.

Die Bodenproben werden in gut verschlossenen PVC-Weit-halsflaschen aufbewahrt.

- b) Von den A_h -Horizonten wurden, um den klimatischen Extrema, Trockenperiode-Regenperiode, Rechnung zu tragen, Parallelproben über 1 Jahr in PVC-Wannen an Laborluft gelagert und anschließend ebenfalls in gut verschlossenen PVC-Weit-halsflaschen aufbewahrt.
- c) Da die Bodenproben unterschiedliche Wassermengen enthielten, wurde für jeden Horizont der Trockenwert m_1/m_0 bestimmt. Je 2 Proben à 10 g vorbehandelten Bodens wurden in Wägegläschen 48 h im Trockenschrank bei 105 C getrocknet, anschließend verschlossen, in einem Exsiccator über Trockenperlen in das Temperaturgleichgewicht gebracht und ausgewogen.

Für die nach a) vorbereiteten Bodenhorizonte ergaben sich Trockenwerte zwischen 1,00 und 1,03 ; lediglich der Horizont $B_{h,fe}$ von Gorleben wies einen relativ hohen Wert von 1,215 auf. Die nach b) vorbereiteten A_h -Horizonte hatten alle Werte unter 1,01.

4.1.4 Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten von experimentellen Parametern

Wie aus der Literatur bekannt ist, kann der Verteilungskoeffizient von einer Reihe experimenteller Parameter abhängen. Wir haben die Abhängigkeit von Schüttelmethode und -dauer, Bodenmasse, Lösungsvolumen und Aktivität untersucht. Als Lösungsmittel wurde bei allen Versuchen demineralisiertes Wasser verwendet.

a) Schüttelmethode und -dauer

Zur Bestimmung der Einstellungsdauer des Sorptionsgleichgewichts wurde die Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten von der Schütteldauer für folgende Schüttelmethoden untersucht:

A Horizontalschüttelmaschine der Fa. Bühler, Typ SM
Schüttelstärke Stufe 1,5

- B Horizontalschüttelmaschine (Bühler SM)
Schüttelstärke Stufe 1,5 und zusätzlich viermal pro Tag Drehen der Zentrifugengläser um ihre Querachse mit der Hand oder einer geeigneten Vorrichtung, etwa 5 Umdrehungen in 10 bis 20 s, sodaß Boden und Lösung gut durchmischt werden (im folgenden wird dies abgekürzt als Handschütteln bezeichnet)
- C Horizontalschüttelmaschine (Bühler SM)
Schüttelstärke Stufe 4,5 zusätzlich Handschütteln wie oben, da selbst bei dieser Stufe die unteren Schichten der Bodenprobe nur unvollständig mit der Lösung durchmischt werden.
- D Rotationsschüttelmaschine der Fa. Heidolph mit Universaladapter, Drehgeschwindigkeit 20 min^{-1}

Schüttelmethode B wird im folgenden als Standardschüttelverfahren bezeichnet.

Die Ergebnisse für den Bodenhorizont Brünkendorf B_v , der in seiner Zusammensetzung eine Mittelstellung zwischen den vorwiegend mineralischen C-Horizonten und den humosen A_h -Horizonten einnimmt, sind in Abbildung 5 dargestellt. Beachtet man, daß die Fehlergrenzen der einzelnen Meßpunkte zwischen 10 und 30% liegen, so ergibt sich für Strontium weder eine signifikante Zeitabhängigkeit noch ein Unterschied zwischen den untersuchten Schüttelmethoden. Bei Cer ist ein geringer zeitlicher Anstieg zu beobachten. Die höchste Zeitabhängigkeit findet man bei Cs, die auch beim Bodenhorizont Trebel C gemessen wurde. Hier wird weder beim starken Linearschütteln noch beim Rotationsschütteln im untersuchten Zeitraum ein zeitlich konstanter Wert (Plateau) erreicht. In diesen beiden Fällen läßt sich keine sinnvolle Begrenzung der Schüttelzeit festlegen, da dies einen letztlich willkürlichen K_d -Wert liefert.

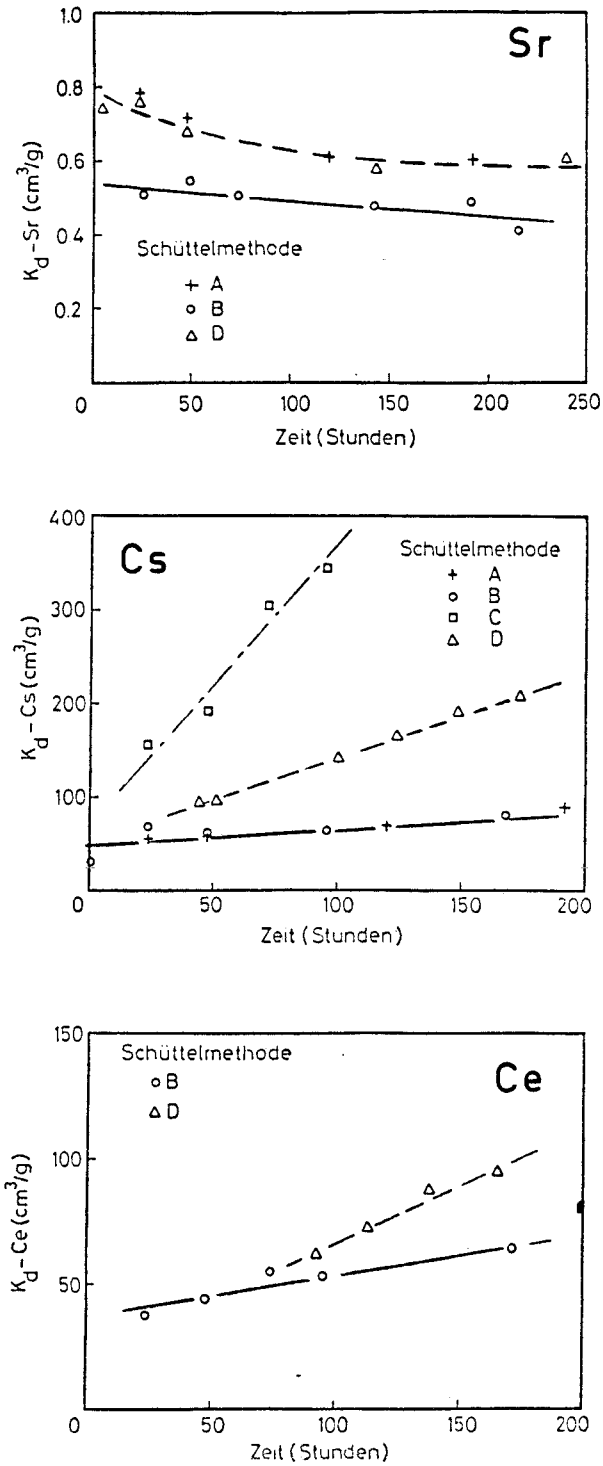


Abb. 5 Abhängigkeit der K_D -Werte von Sr, Cs und Ce von der Schüttelzeit und der Schüttelmethode beim Bodenhorizont Brunkendorf B_V

Das Schüttelverfahren sollte so gewählt werden, daß einerseits der zeitliche Anstieg nicht zu lange dauert, daß andererseits ein zeitlich konstantes Gleichgewicht erreicht wird. Diese Bedingung wird von dem Schüttelverfahren B erfüllt, wobei dessen Einhaltung jedoch nur im Falle des Cäsiums besonders kritisch ist. Dieses Verfahren wird bei den weiteren Messungen unter Verwendung einer Schüttelzeit von 48 Stunden als Standardschüttelverfahren verwendet.

Ganz anders liegen die Verhältnisse beim A_h -Horizont (Abb.6). Hier nimmt der Verteilungskoeffizient durch Lösen der Huminstoffe mit der Zeit ab. Beim Standardschüttelverfahren wird ein stationäres Gleichgewicht nach etwa 48 h erreicht.

Es ist nicht auszuschließen, daß beim Cs beim starken Linear-schütteln und beim Rotationsschütteln nach längerer Schütteldauer ein Plateau erreicht werden kann. Jedoch verursacht das starke Schütteln möglicherweise eine Veränderung des Bodenmaterials, so daß die so erhaltenen Werte nicht mehr repräsentativ sind für die im ungestörten Boden wirksamen Sorptionsmechanismen. Dies würde eine zusätzliche Unsicherheit bei der Interpretation der in Batch-Versuchen gemessenen K_d -Werte verursachen, die, wie die Versuche gezeigt haben, ohnehin im Verhältnis Bodenmasse zum Lösungsvolumen und von anderen

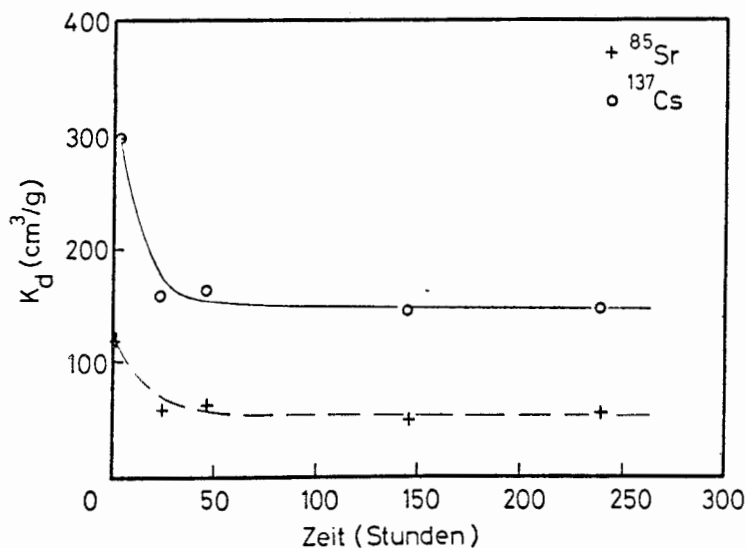


Abb. 6 Abhängigkeit der K_d -Werte von Sr und Cs von der Schüttelzeit beim Bodenhorizont Trebel A_h
Schüttelmethode: Standardverfahren B

Parametern abhängen können. Im Zweifelsfall sollte das Schütteln möglichst schonend durchgeführt werden, um den Boden in bezug auf den ungestörten Zustand so wenig wie möglich zu verändern.

Ferner sei darauf hingewiesen, daß die Ergebnisse nicht ohne weiteres von einem Nuklid auf ein anderes übertragen werden können, sondern für jedes Nuklid eigene Messungen durchgeführt werden müssen. Dies gilt auch für die folgenden Untersuchungen.

b) Lösungsvolumen V , Bodenmasse m und Verhältnis V/m

Der Einfluß dieser Größen auf den Verteilungskoeffizienten wurde wieder am Beispiel des Bodenhorizonts Brünkendorf B_v untersucht. Die K_d -Werte von ^{137}Cs und ^{85}Sr zeigen im Rahmen der Meßfehlergrenzen von 10 - 30% eine lineare Abhängigkeit vom Lösungsvolumen (Abb. 7a) und eine umgekehrt proportionale Abhängigkeit von der Bodenmasse (Abb. 7b). Da die Abhängigkeit der K_d -Werte von der Masse und dem Lösungsvolumen gegenläufig ist, hängen die K_d -Werte innerhalb des von uns untersuchten Bereichs bei konstantem Verhältnis m/V nicht von m und V ab.

c) Aktivität

Wichtige Voraussetzung für die Messung der K_d -Werte und für die Berechnung der Retardationsfaktoren aus den Säulenversuchen ist die Gültigkeit der Beziehung (3) im Bereich von Tracermengen, d.h. von Nuklidmengen, die sehr klein sind gegen die Nuklid-Austauschkapazität des Bodens:

$$q = K_d \cdot c \quad (3)$$

Der K_d -Wert sollte unabhängig von der Konzentration des gelösten Nuklids, also auch von der zugegebenen Aktivitätsmenge A_0 sein. Anders ausgedrückt: die Adsorptionsisotherme $q = q(c)$ sollte linear sein. Dies wurde überprüft, indem die K_d -Werte der vier Radionuklide bei verschiedenen zugegebenen Aktivitätsmengen für mehrere Bodenhorizonten gemessen wurden. Als Beispiel sind in Abbildung 8 die Adsorptionsisothermen der Nuklide für den A_h -Horizont von Trebel zu sehen. In der logarithmischen

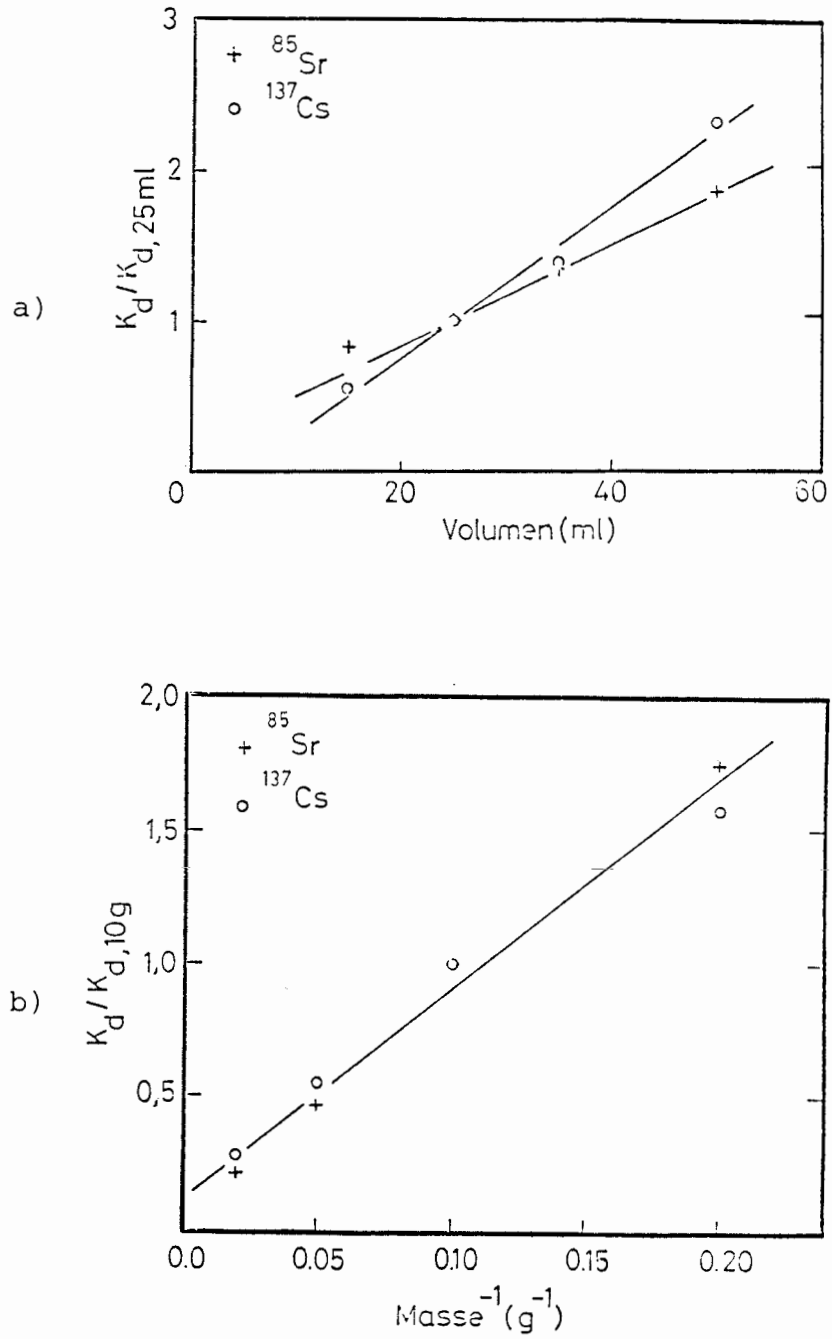


Abb. 7 Abhängigkeit des K_d -Werts von Sr und Cs

a) vom Lösungsvolumen

b) von der Bodenmasse

Bodenhorizont: Brünkendorf B_v

Darstellung müßten bei Gültigkeit von Gl.(3) die Steigungen der Geraden +1 sein. Dies ist im Rahmen der Meßgenauigkeit der Fall.

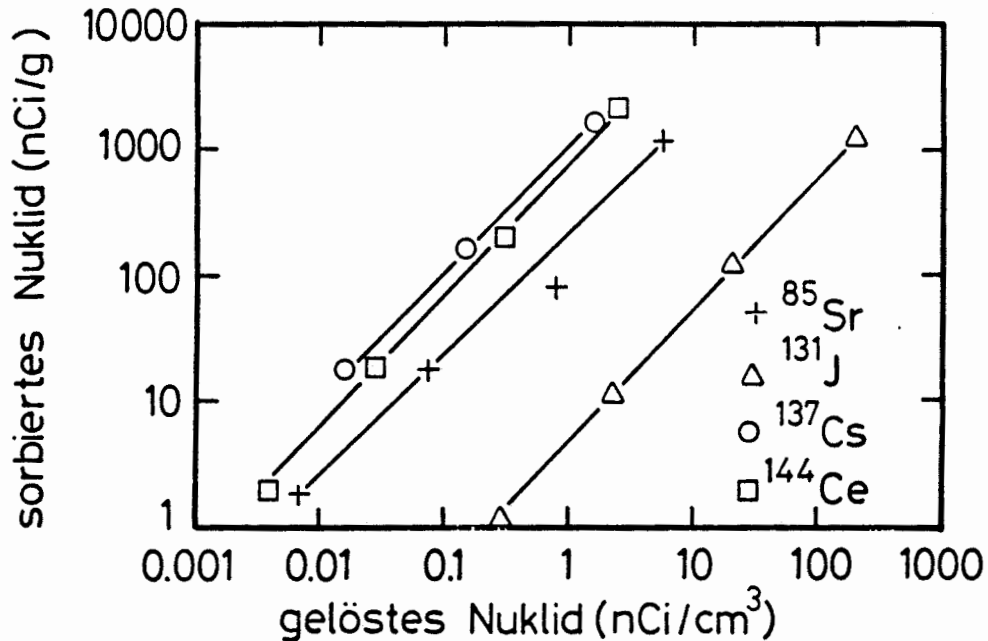


Abb. 8 Adsorptionsisothermen der Radionuklide Sr, J, Cs und Ce am Boden Trebel A_h

4.1.5 Arbeitsvorschrift

Aus den Ergebnissen in 4.1.4 leiten wir folgende Arbeitsvorschrift ab:

Pro Horizont werden mindestens 4 Parallelproben angesetzt.

Gefäß: Zentrifugenglas 120 ml (Fa. Kartell)

Bodenmasse: 10 g gut gemischt

Lösungsmittel: 25 ml demineralisiertes Wasser

Nuklidzugabe: sofort nach Lösungsmittelzugabe, ca. 200 nCi

Schütteln: 48 h Standardschüttelmethode (B)

Trennen: Zentrifugieren mit einer Beschleunigung von ca. 80 g entsprechend 3000 min⁻¹ in einer Varifuge (Fa. Heraeus Christ). Anschließend sofortiges Abpipettieren von je 5 ml überstehender Lösung in Reagenzgläser von 100 mm Länge und 16 mm Ø

Messung: Aktivitätsbestimmung im Bohrlochkristall

4.2 Säulenversuche

4.2.1 Die Säulenanlage

Für die 8 Lysimeter wurden 4 fahrbare Gestelle aus Winkeleisen gebaut. Der Aufbau einer Säule ist in Abbildung 9 zu sehen.

Die Standfläche der Säulen besteht aus einer 24 mm dicken PVC-Platte und einer 12 mm dicken Aluminiumplatte, beide 500x500 mm² groß. In ihrer Mitte ist ein Loch von 15 mm Durchmesser gebohrt, in das der Ausflußstutzen für das Sickerwasser eingeklebt ist. Vom Ausflußstutzen führt ein Schlauch, der beim Transport der Säulen durch einen Gummistopfen ersetzt wird, in die Flasche für das Sickerwasser. Vor dem Aufstellen der Säulen in den Gestellen wurden bei jeder Säule am unteren Ende ca. 50 mm Boden durch Filterkies ersetzt (Korndurchmesser 1 mm), ein feinmaschiges Kunststoffnetz aufgelegt und die Bodenplatten angeklebt.

Zur Abschirmung des Personals von der radioaktiven Strahlung der Säulen wurden zwei Mauern aus Röbalithsteinen gebaut. Um den Aufenthalt in unmittelbarer Nähe der Säulen so kurz wie möglich zu halten, wurde darauf geachtet, daß die Beregnungsaufsätze rasch von den Säulen abgehoben und die Schläuche an den Ausflußstutzen leicht entfernt werden können.

Für jede Säule wurde ein Beregnungsaufsatz aus Plexiglas gebaut (Abb. 10). Durch ca. 150-160 Kanülen tropft das Regenwasser langsam in ca. 8 Stunden auf die Bodenoberfläche. Der Wasserdurchsatz kann mittels einer Schlauchpumpe, die mit allen 8 Beregnungsaufsätzen verbunden ist, reguliert werden. Der Vorratsbehälter der Aufsätze hat ein Volumen von 1 Liter, ist also nur wenig größer als die pro Woche zugeführte Regenwassermenge von 0,8 Liter, damit der Druck im Behälter bei Betrieb der Schlauchpumpe rasch ansteigt. Entsprechend dem Säulenquerschnitt wurden die Kanülen auf einer Kreisfläche mit 30 cm Durchmesser verteilt, damit eine gleichmäßige Beregnung der Säulen über ihre gesamte Oberfläche gewährleistet ist.

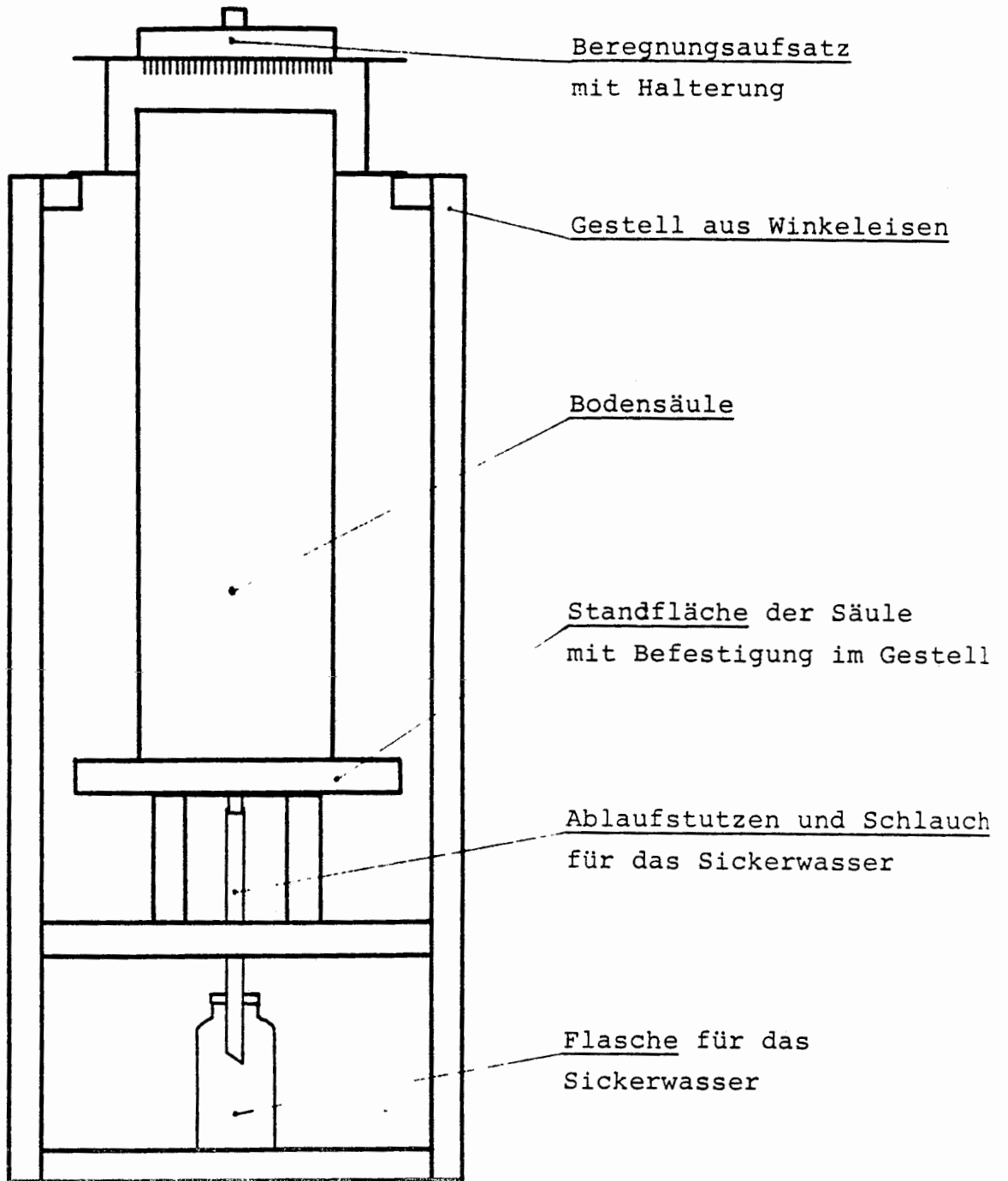


Abb. 9 Aufbau einer Säule im Labor

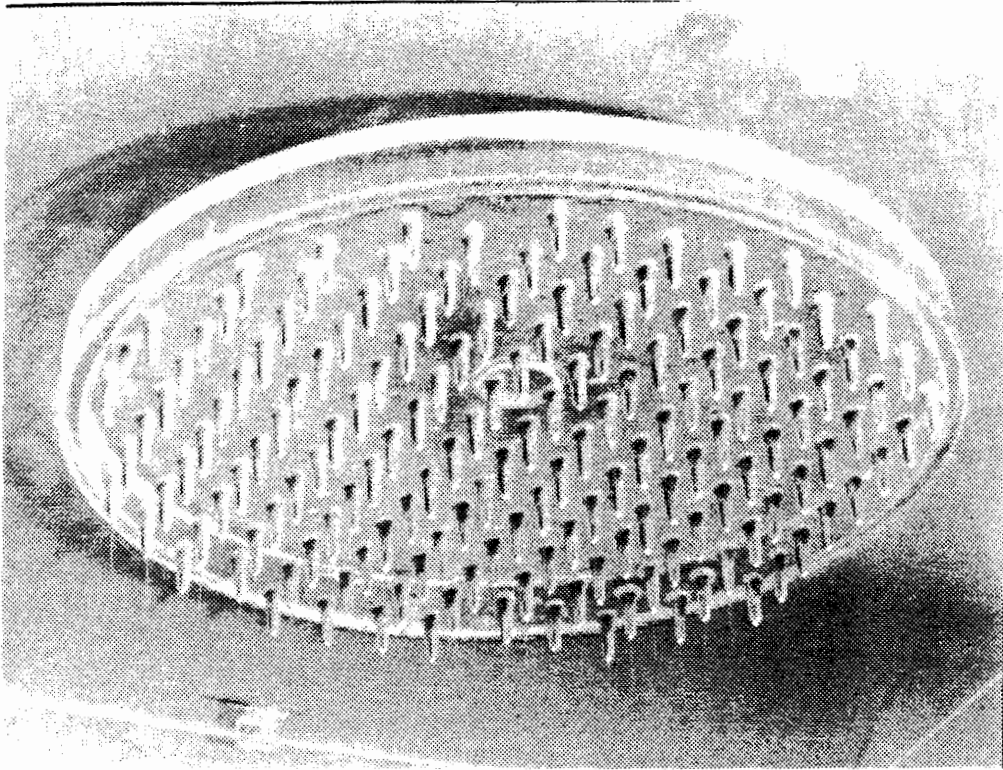


Abb. 10 Der Beregnungsaufsatz

Das künstliche Regenwasser wurde gemäß den Angaben von Herrn Dr. Albertsen hergestellt aus 2 Liter Aqua dest., 0,5 g KHCO_3 , 0,85 g $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 0,71 g $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 0,48 g $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, 2,13 g $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ und 0,78 g $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$. Dieses Konzentrat wurde noch einmal 1:100 verdünnt. Die Beregnungsmenge pro Säule beträgt wöchentlich 800 ml entsprechend 600 mm Regen/Jahr.

4.2.2 Scanner und Meßtechnik

Ein Foto des gesamten Meßplatzes für die Lysimeter ist in Abbildung 11 zu sehen, ein Blockdiagramm in Abbildung 12.

Der Meßplatz besteht im wesentlichen aus einem Drehteller, auf dem die Säule sich während der Messung dreht, aus einem Scanner, mit dem der Strahlendetektor an der Säule auf- und abgeföhren wird, und einem Vielkanalanalysator, der die vom Detektor kommenden Impulse sortiert und ein Energiespektrum liefert.

Gestell mit Säulen

Mauer aus Röbalithsteinen zur Abschirmung der Gestell-Säulen

Fahrbare Abschirmmauer für die Meß-Säule

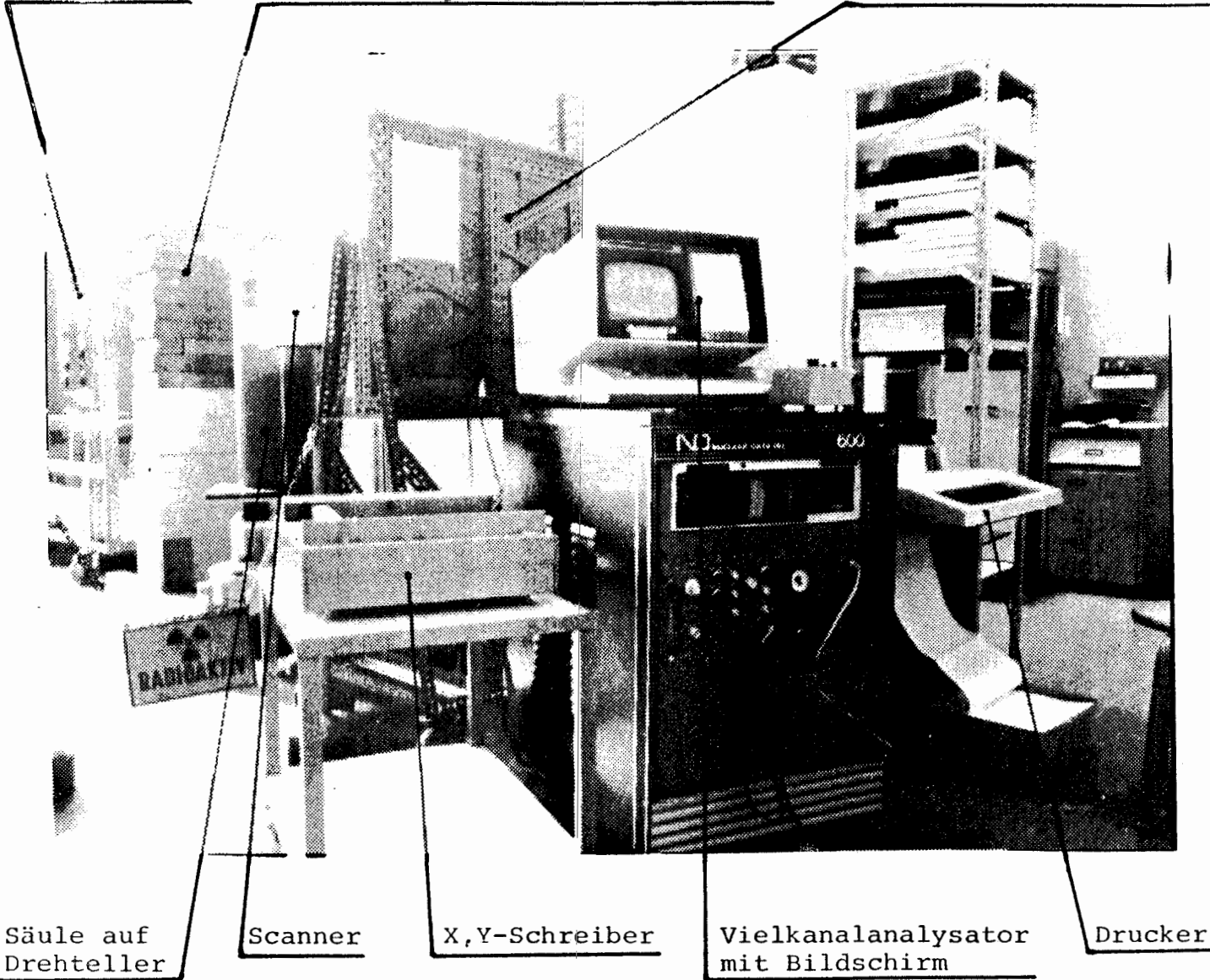


Abb. 11 Der Meßplatz für die Säulen

Abb. 1 Der Meßplatz für die Säule

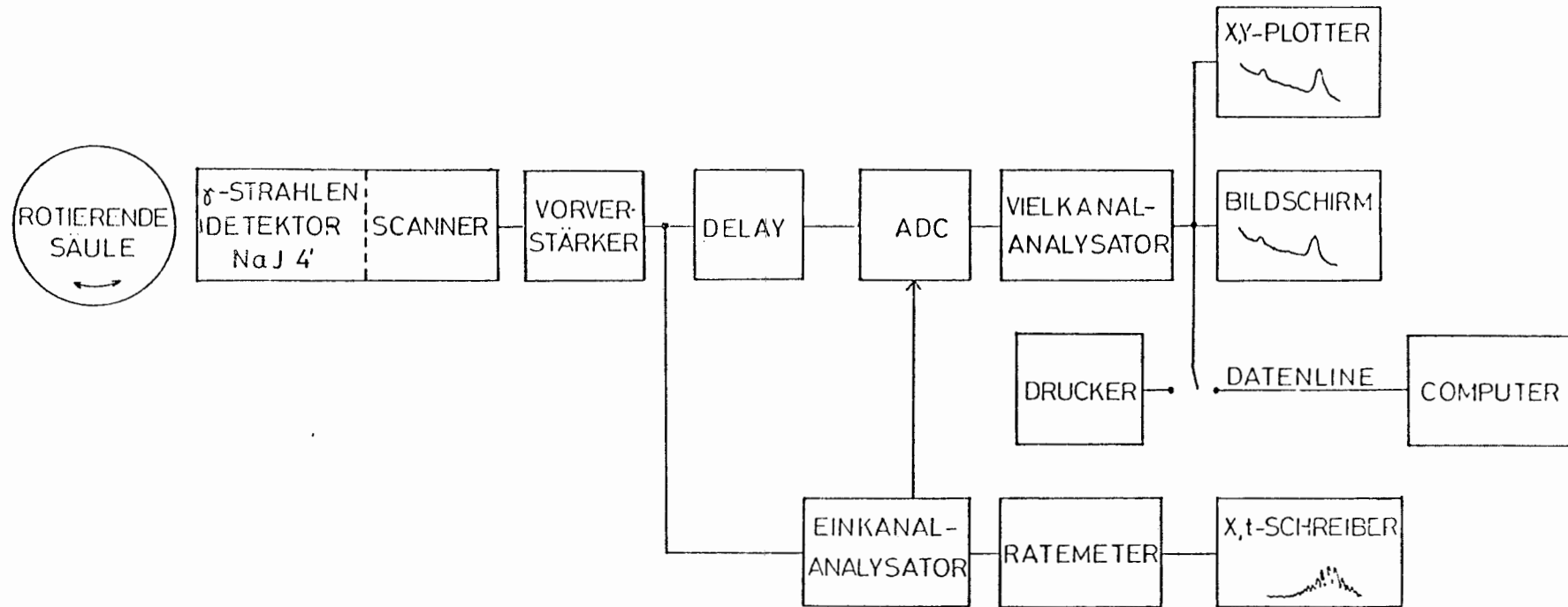
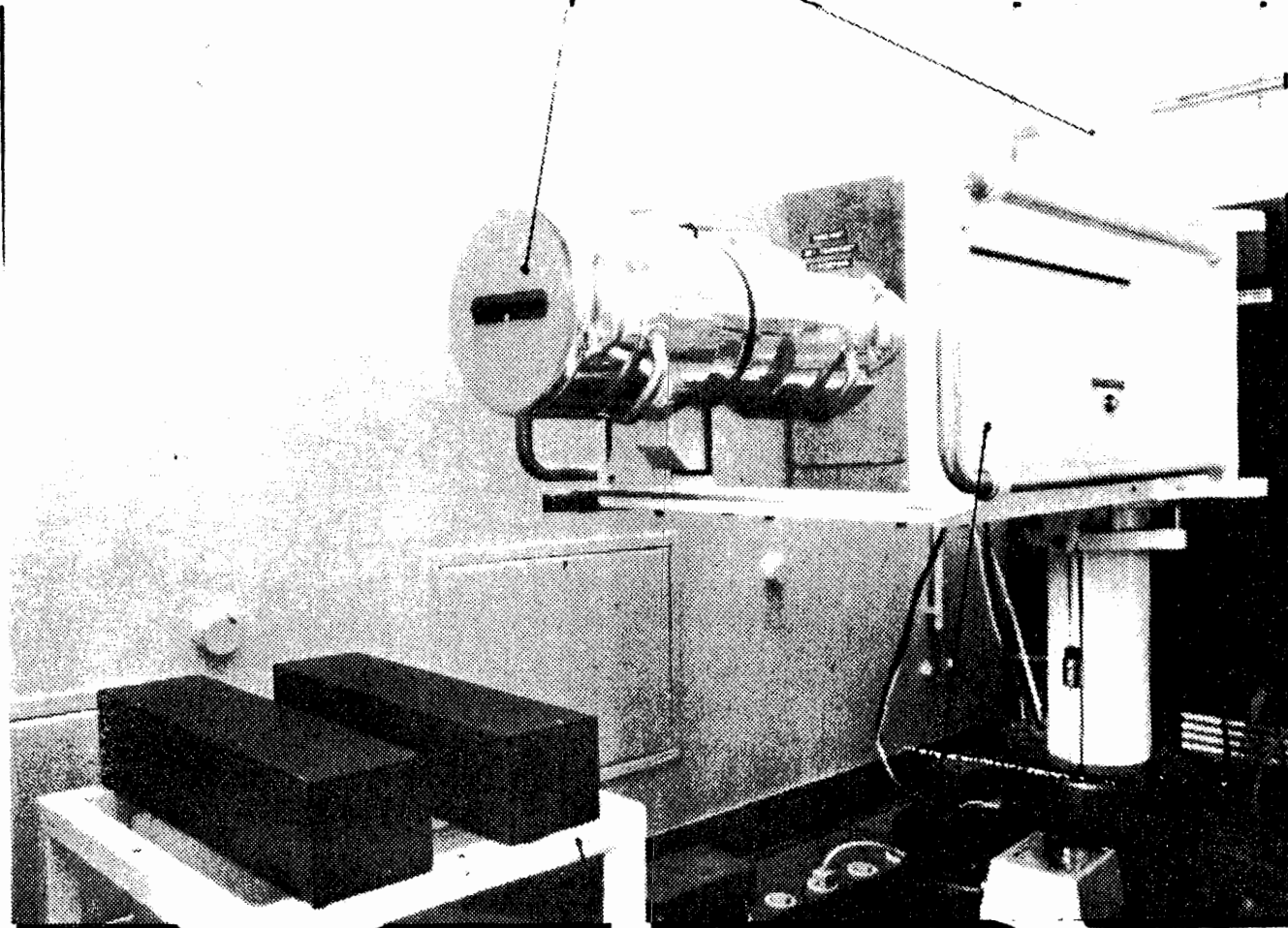


Abb. 12 Blockdiagramm des Säulen-Meßplatzes

Bleiabschirmung des NaJ-Kristalls
mit Kollimatorschlitz

Scanner-Säule, an der das Gehäuse
auf- und abgefahren wird



Tisch für die Säulen, steht auf
dem (nicht sichtbaren) Drehteller

Metallgehäuse mit
Detektor und Motor

Abb. 13 Der Scanner

Zur Abschirmung der Säule auf dem Drehteller wurden zwei fahrbare Mauern aus Röbalithsteinen gebaut.

Der Drehteller wurde für eine langsame Rotation der Säulen, ca. 5 - 15 Umdrehungen/Minute, konstruiert. Der Teller wird über ein Schneckengetriebe von einem Motor mit stufenlos regelbarer Drehzahl angetrieben. Drehzahl und Drehrichtung des Motors werden über Fernbedienung eingestellt, um den Aufenthalt in unmittelbarer Nähe der Säule so kurz wie möglich zu halten. In dem Teller sind vier in ihrer Höhe justierbare Halterungen für den Tisch eingeschraubt, auf dem die Säule steht (s. auch Abb. 13).

Der Scanner besteht aus einer fahrbaren Stahlsäule, an der ein Metallgehäuse auf- und abbewegt werden kann, und zwar sowohl von Hand als auch mit einem im Gehäuse eingebauten, wiederum mit Fernbedienung ausgestatteten Motor (Abb. 13). In dem Gehäuse ist ferner der Gamma-Strahlen-Detektor befestigt, ein NaJ-Kristall (4x4,5 Zoll) mit Photomultiplier und Vorverstärker (Stromverstärkung). Der NaJ-Kristall ist mit Blei abgeschirmt und hat eine Kollimatoröffnung der Größe $115 \times 25 \text{ mm}^2$ (Breite x Höhe). Da diese Öffnung für unsere Zwecke zu groß ist, wurden drei Blei-Einschübe gebaut, die Öffnungen der Breite 110 mm und der Höhe 5, 10 und 15 mm haben.

Die vom Detektor kommenden Impulse werden von einem Analog-Digital-Converter (ADC) gemäß ihren Amplituden sortiert und in einem Vielkanalanalysator (VKA) (Firma Nuclear Data, Modell ND600) gezählt (s. Abb. 11 und 12). Ein Energie-Spektrum kann in maximal 8192 Kanälen gespeichert, auf einem Bildschirm dargestellt und mit fest eingebauten Funktionen über Tastatur analysiert werden (Energieeichung, Eingrenzung der auszuwertenden Peakfläche, Berechnung von Nettofläche, Background und Halbwertsbreite usw.). Das Spektrum kann auf einem x,y-Plotter gezeichnet und auf einem Drucker ausgegeben werden.

Neben der Vielkanal-Analyse ist auch die Analyse mit einem Kanal (SCA) möglich. Die zwischen zwei einstellbaren Diskriminator-Schwellen gezählten Impulse werden auf einem Lin/Log-Ratemeter angezeigt und auf einem x,t-Schreiber in Abhängigkeit von

der Zeit aufgezeichnet. Die Einstellung der Diskriminator-Schwellen kann über den Bildschirm erfolgen, indem dort nicht das gesamte Spektrum abgebildet wird, sondern nur der interessierende Teil (z.B. die Umgebung des Cs-Peaks). Dazu wird das Gate des ADC vom SCA gesteuert, d.h. der ADC sortiert nur die Impulse zwischen den Diskriminator-Schwellen. Um dies zu ermöglichen, war es notwendig, die elektronische Verzögerung im SCA durch ein dem VKA vorgeschaltetes Delay auszugleichen.

Zur Auswertung bzw. Umrechnung der Scanner-Meßkurven wurde ein Tischrechner (Tektronix 4051) verwendet, an den ein Plotter und ein Drucker angeschlossen sind. Es handelt sich um einen BASIC-Rechner mit Graphischem Display, interner Magnetband-Station und 32 K Byte Memory. Zweckmäßigerweise wurde der Rechner nicht in unmittelbarer Nähe der Lysimeter aufgestellt, weil diese in einem radioaktiven Kontrollbereich stehen müssen. Zur Speicherung der an den Säulen gemessenen Spektren wurde deshalb ein mehradriges Kabel vom Vielkanalanalysator im Kontrollbereich zum Rechner im nichtaktiven Bereich verlegt (sog. Datenline). Der Rechner wurde mit einem Data-Communication-Interface ausgestattet, das in der Lage ist, über Datenline ankommende Zeichen im ASCII-Format zu empfangen. Anschließend werden die Daten entschlüsselt und auf Band gespeichert.

4.2.3 Meßverfahren

Der Detektor des Scanners kann sowohl kontinuierlich an der rotierenden Säule entlangefahren, als auch in eine bestimmte Tiefe gebracht werden, in der er dann für eine festzusetzende Zeit die Strahlung mißt. Während man beim "kontinuierlichen" Abscannen nur ein qualitatives Bild über die Tiefenverteilung der Aktivität erhält, kann man aus den Meßwerten beim "diskreten" Abscannen die tatsächliche Aktivität in den verschiedenen Schichten berechnen und aus dieser Aktivitätsverteilung dann mit Hilfe eines Ausbreitungsmodells die Retardationskoeffizienten des betreffenden Nuklids.

Das Meßprinzip beim diskreten Abscannen ist in Abbildung 14 dargestellt.

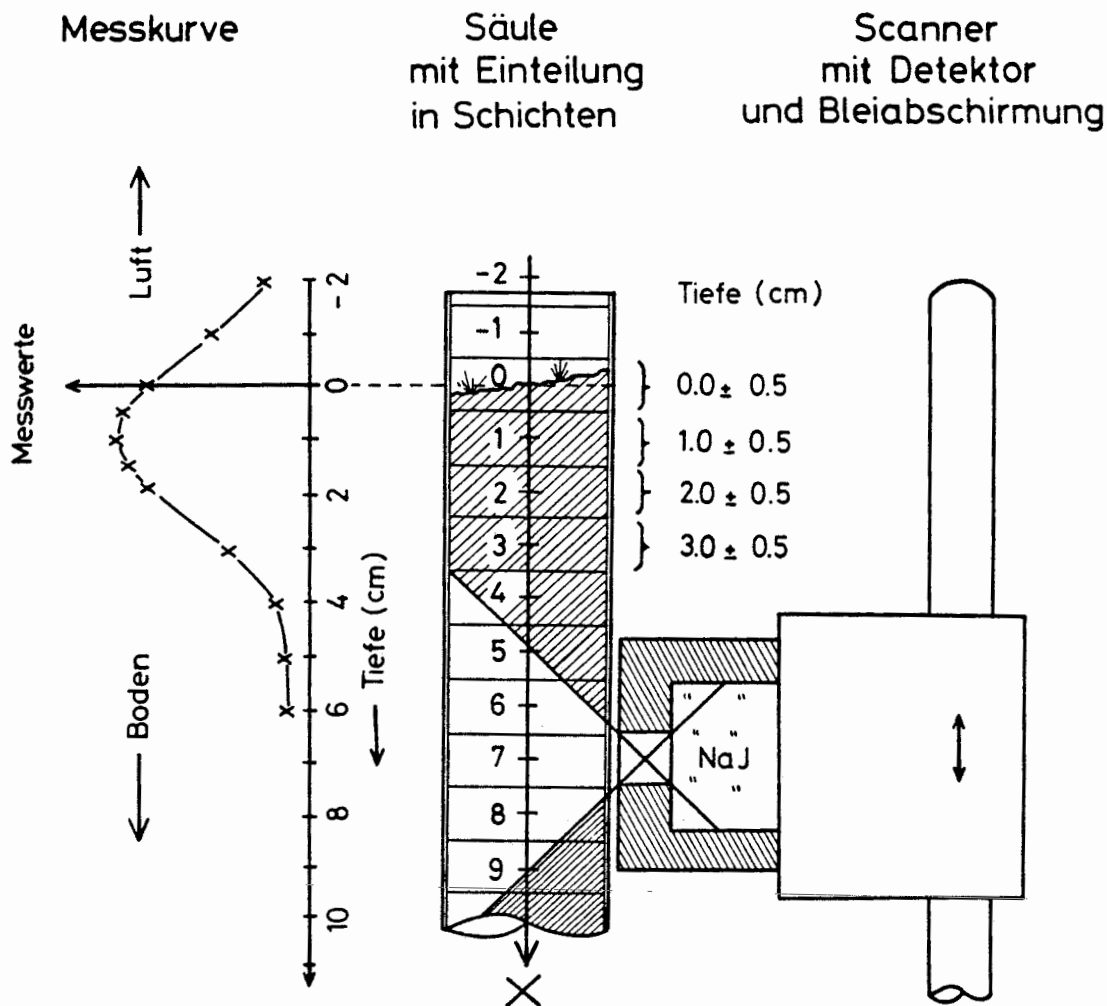


Abb. 14 Meßprinzip beim diskreten Abscannen der Säulen (Säule und Scanner nicht maßstabgerecht)

Der Abstand der Detektor-Positionen richtet sich nach dem verwendeten Kollimatorschlitz. Da aus meßtechnischen Gründen der Kollimatorschlitz 10 mm gewählt wurde, erschien es sinnvoll, als Abstand der diskreten Scanner-Messungen 1 cm zu wählen (in der Nähe des Maximums der Strahlung werden auch Zwischenwerte gemessen). Daraus ergibt sich, daß die Bodensäulen in Schichten von ein Zentimeter Dicke aufgeteilt werden. Bezeichnet man die Symmetrieachse der Säulen als x-Achse, so sollen die Bodenschichten auf dem positiven Ast, die Oberfläche im Nullpunkt und die Luft-"Schichten" auf dem negativen Ast liegen

(Abb. 14). Die Gesamtzahl der Bodenschichten n ist $n \leq 100$, da die Säulen höchstens 1 m lang sind. Zur exakten Tiefeneinstellung des Detektors wurden sowohl auf den Säulen als auch auf dem Scanner Bandmaße aufgeklebt.

Die Oberflächen der Säulen stellen ein besonderes Problem dar, weil sie nicht eben sind; sie haben neben dem Bewuchs auch Buckel und Senken. Für eine Modelluntersuchung wäre eine ebene Oberfläche zweifellos vorteilhafter. Da jedoch diese Untersuchungen der Realität möglichst nahe kommen sollen, wurden die Oberflächen so belassen, wie sie bei der Probenahme waren. Daher umfaßt die "Oberfläche" für die Ausbreitungs-Messungen im allgemeinen mehr als die nullte Schicht.

Aus Abb. 14 ist ersichtlich, daß die vom Scanner in einer bestimmten Tiefe gemessene Strahlung nicht nur aus der betreffenden Schicht stammt, sondern aus einem kegelförmigen Ausschnitt aus der Säule, wobei der Öffnungswinkel, vom Detektor-Kristall aus gesehen, sich nach dem Kollimatorschlitz richtet. Die gemessene Scanner-Kurve gibt also nicht die tatsächliche Aktivitätsverteilung in der Säule wieder. Vielmehr setzt sich jeder Meßwert aus den Anteilen verschiedener benachbarter Schichten zusammen. Es ist deshalb notwendig, die Scanner-Meßkurve auf die tatsächliche Aktivitätsverteilung umzurechnen. Dazu wiederum benötigt man die Meßkurven einzelner, mit Aktivität beladener Schichten, denn aus solchen Kurven setzt sich die gesamte Meßkurve einer Säule zusammen.

Zu diesem Zweck wurden 1 cm dicke Sandschichten in Plexiglasschalen, die den Umfang der Lysimeter hatten, gleichmäßig mit den 4 Nukliden beaufschlagt, und zwar jeweils 0,5 und 1,0 μCi (außer ^{137}Cs : 5 μCi). Die beaufschlagten Schichten wurden in axialer Richtung mit Sand abgeschirmt. Diese "künstlichen" Säulen wurden für jede der 4 Kollimatoröffnungen mit dem Scanner ausgemessen.

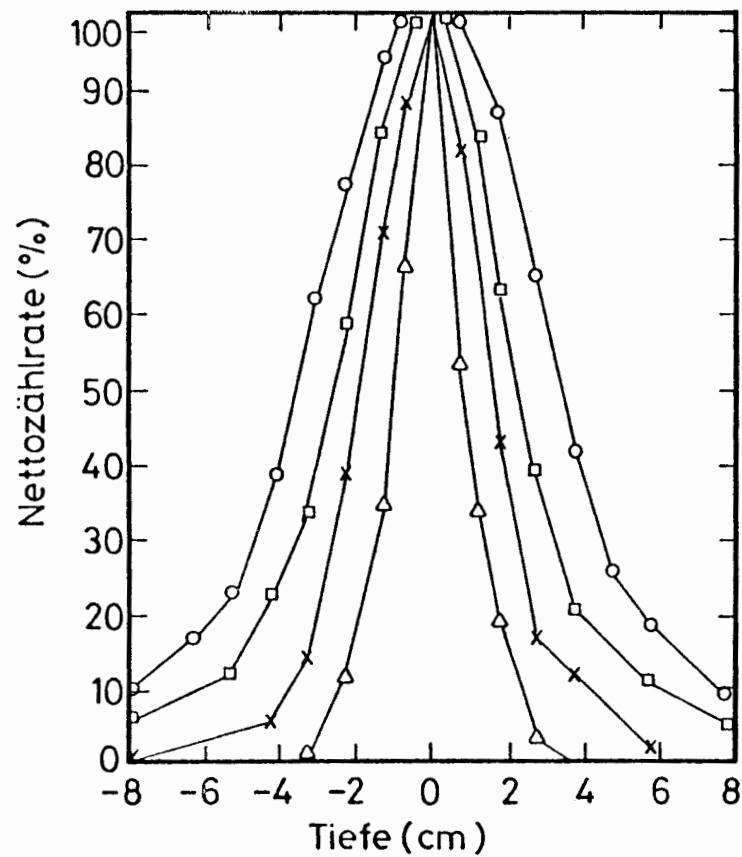
Bezieht man die Meßwerte $Y(x_i)$ auf das Maximum $Y(x=0)$ (Mittelpunkt der beladenen Schicht), so erhält man die "Eichfaktoren" $e_i = \frac{Y(x_i)}{Y(0)}$. Sie sollten, wie die Meßwerte, symmetrisch zu $x=0$ sein: $e_i = e_{-i}$ und unabhängig von der Aktivität.

Nettozählrate ...	Y(-3)	Y(-2)	Y(-1)	Y(0)	Y(1)	Y(2)	Y(3)	...
Eichfaktoren ...	e ₃	e ₂	e ₁	e ₀ =1	e ₁	e ₂	e ₃	...

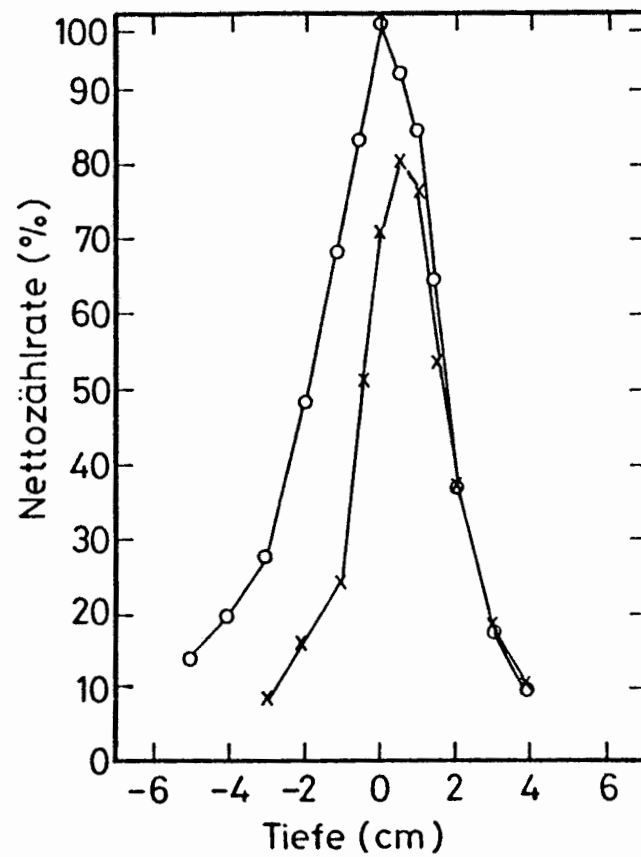
In Abb. 15a sind die gemittelten Eichfaktoren (in %) für ¹³⁷Cs mit der Kollimatoröffnung als Parameter wiedergegeben. Die leichte Asymmetrie ist durch den Aufbau der Sand-Säulen aus Plexiglasschalen bedingt. Die breiten Kollimatorschlitze (15 und 25 mm) liefern breite Eichkurven mit breiten Maxima. Die schmalen Schlitze (5 und 10 mm) liefern gut definierte Maxima (Breite ≤ 0.5 cm). Die Eichkurve des 5-mm-Schlitzes hat zwar die beste Halbwertsbreite (≤ 2.0 cm), ist also für die Umrechnungen der Scanner-Meßkurven am besten geeignet; die Zählrate des Maximums ist aber um den Faktor 2 kleiner als die des 10-mm-Schlitzes, so daß die doppelte Aktivität aufgebracht werden müßte. Wenn man bei der Wahl des Kollimatorschlitzes die drei Faktoren: Strahlenschutz (geringe Aktivität), hohe Empfindlichkeit und langer Beobachtungszeitraum (hohe Aktivität) und schmale Eichkurve (kleiner Kollimatorschlitz) zusammen betrachtet, stellt die Verwendung des 10-mm-Schlitzes einen akzeptablen Kompromiß dar.

Die Oberflächen-Problematik der Säulen erfordert besondere Eichmessungen mit beaufschlagten Schichten, die nur nach einer Seite hin mit Sand abgeschirmt sind. In Abbildung 15b ist eine Messung für ¹³⁷Cs (Kollimator 10 mm) wiedergegeben. Erwartungsgemäß sind die Meßwerte in Luft und nahe der Oberfläche höher als im Falle beidseitiger Abschirmung. Der Effekt tritt bis ca. 2 cm Tiefe im Sand auf. Für die Umrechnung der Scanner-Meßwerte ist dieser Effekt zu berücksichtigen. Die leichte Verschiebung des Maximums der Meßwerte um ca. 0.5 cm ist wegen der stets vorhandenen Unebenheit der Säulen-Oberfläche (siehe oben) für die Umrechnung nicht bedeutungsvoll.

Da für diese Eichmessungen Sand verwendet wurde, sind die Eichwerte nicht genau dieselben, die man in den Bodensäulen finden würde. Es ist aber unmöglich, in den Säulen selbst



a) Nuklid (0 cm) nach oben (-) und unten (+) mit Sand abgedeckt.
 Parameter: Kollimatorschlitz
 -o- 25 mm -□- 15 mm
 -x- 10 mm -△- 5 mm



b) Nuklid (0 cm) nach unten (+) mit Sand abgedeckt, nach oben (-) mit Luft, -x- Sand
 Kollimatorschlitz 10 mm

Abb. 15 Eichmessungen mit ^{137}Cs in "künstlichen" Sand-Säulen

Eichmessungen durchzuführen, man müßte in jedem Fall auf "ähnliche" Bodenproben zurückgreifen. Angesichts der Inhomogenitäten auch bei unmittelbar benachbarten Bodenproben sind deshalb die Sandwerte für unsere Zwecke als hinreichend genau anzusehen.

4.2.4 Auswertung

Die bei dem diskreten Abscannen einer Säule erhaltenen Scanner-Meßkurve $M(x_i)$ setzt sich additiv aus Meßkurven $Y(\xi_j - x_i)$ zusammen, die man erhalten würde, wenn man die einzelnen Schichten der Säule ohne Störung durch die anderen Schichten (also wie bei den Eichmessungen) abscannen könnte (Abb. 16).

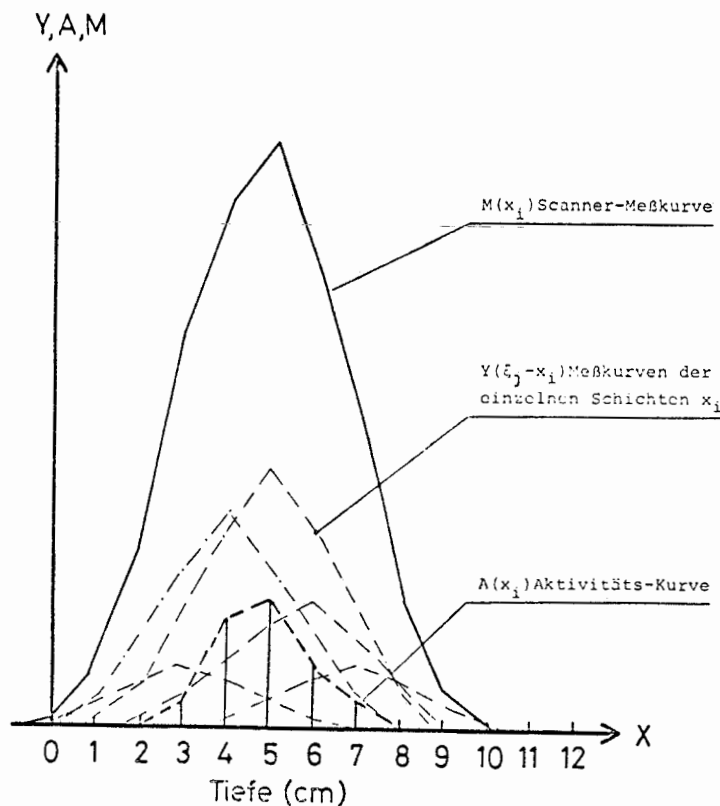


Abb. 16 Konstruktion der Scanner-Meßkurve aus den Meßkurven der einzelnen Schichten

Die Koordinatenachse ξ_j soll den Mittelpunkt der jeweiligen Schicht x_i als Nullpunkt haben. Den $Y_{ji} \equiv Y(\xi_j - x_i)$ sind die tatsächlichen Aktivitäten in den Schichten $A_i \equiv A(x_i)$ eindeutig zugeordnet. Wären die A_i bekannt, könnte man die Y_{ji}

mit Hilfe der Eichmessungen berechnen und aus den Y_{ji} die Kurve $M(x_i)$, vorausgesetzt, daß über den hier interessierenden Aktivitätsbereich von 1-1000 μCi die Meßkurven proportional zu den Aktivitäten sind. Das heißt, die A_{ji} , bezogen auf ihr Maximum $Y_{ji} \equiv Y(x_i)$, sollen unabhängig von der Aktivität A_i sein: Die Gewichtungsfaktoren w_{ji}

$$w_{ji} = \frac{Y(\xi_j - x_i)}{Y(x_i)} \quad i, j = 1, \dots, n$$

sind also nur vom Nuklid und vom Kollimatorschlitz abhängig. Es sind die Eichwerte e_{j-i} .

Da die Maxima $Y_{ji} \equiv Y(x_i)$ proportional zu den Aktivitäten sind:

$$Y(x_i) = B \cdot A(x_i) ,$$

folgt

$$Y(\xi_j - x_i) = w_{ji} \cdot B \cdot A(x_i) .$$

Ein Scanner-Meßwert der Schicht x_i ist also (n = Zahl der Schichten)

$$M(x_i) = \sum_{j=0}^n Y(\xi_i - x_j)$$

$$M(x_i) = B \cdot \sum_{j=0}^n w_{ij} \cdot A(x_j) .$$

Es ist zweckmäßig, die Aktivitäten A_j auf die insgesamt aufgebene Aktivität A_0 zu beziehen (zum Zeitpunkt der Aufgabe $t=0$) und die Meßwerte $M(x_i)$ entsprechend auf das Maximum der ersten Messung der Säule unmittelbar nach der Aufgabe des Nuklids, wenn die Aktivität in der Oberfläche konzentriert ist

$$m_i \equiv m(x_i) \equiv \frac{M(x_i)}{M(0)_{t=0}} \quad a_j \equiv \frac{A(x_j)}{A_0} \quad (\sum_j a_j \stackrel{!}{=} 1) .$$

Damit erhält man (wegen $M(0)_{t=0} = B \cdot A_0$)

$$m_i = \sum_{j=0}^n w_{ij} \cdot a_j \quad w_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{für } j=i \\ e_{j-i} & j \neq i \end{cases} .$$

Die normierten Meßwerte sind also auf einfache Weise aus den normierten Aktivitäten zu berechnen:

$$\begin{array}{lcl}
 x_i=0: & m_0 = & a_0 + e_1 \cdot a_1 + e_2 \cdot a_2 + \dots + e_n \cdot a_n \\
 x_i=1: & m_1 = & e_1 \cdot a_0 + a_1 + e_1 \cdot a_2 + \dots + e_{n-1} \cdot a_n \\
 & \vdots & \\
 x_i=i: & m_i = & e_i \cdot a_0 + e_{i-1} \cdot a_1 + e_{i-2} \cdot a_2 + \dots + e_{n-i} \cdot a_n \\
 & \vdots & \\
 x_i=n: & m_n = & e_n \cdot a_0 + e_{n-1} \cdot a_1 + e_{n-2} \cdot a_2 + \dots + a_n
 \end{array}$$

Faßt man die Meßwerte m_i zu seinem Satz \underline{m} zusammen und die Aktivitäten a_i zu \underline{a} , so erhält man mit der Matrix (w_{ij})

$$\boxed{\underline{m} = (w_{ij}) * \underline{a}} \quad (11)$$

n)

$$(w_{ij}) = \begin{pmatrix} 1 & e_1 & e_2 & \dots & e_n \\ e_1 & 1 & e_1 & \dots & e_{n-1} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ e_i & e_{i-1} & e_{i-2} & \dots & e_{i-n} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ e_n & e_{n-1} & e_{n-2} & \dots & 1 \end{pmatrix}$$

Die gesuchten a_j folgen aus (11) mit der zu (w_{ij}) inversen Matrix $(w_{ij})^{-1}$

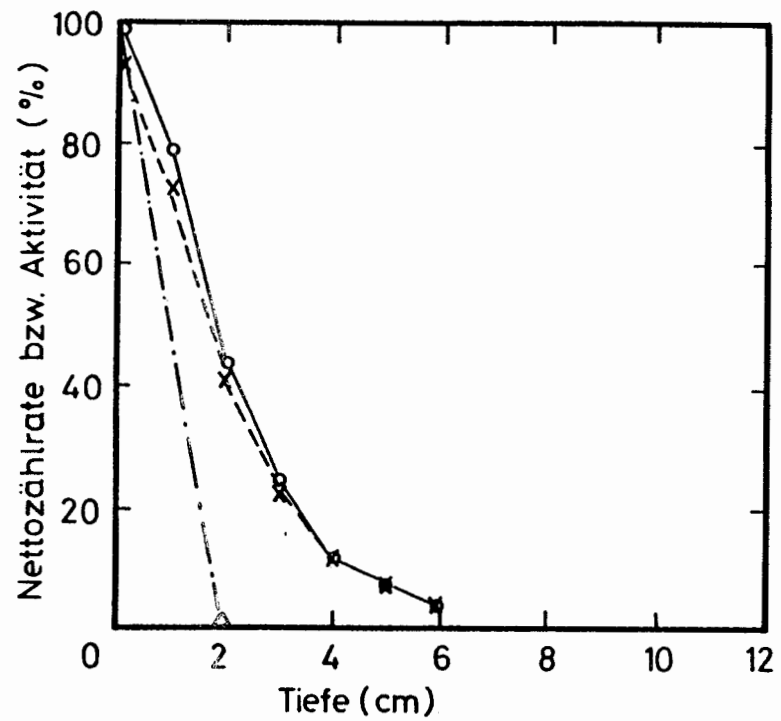
$$\boxed{\underline{a} = (w_{ij})^{-1} * \underline{m}} \quad (12)$$

Da die Aktivitäten in den oberflächennahen Schichten nicht so stark abgeschirmt werden wie in den oberflächenfernen, sind in Gl. (11) und (12) entweder die Matrixelemente oder die Meßwerte mit besonderen, aus den Messungen in 4.2.3 folgenden Korrekturfaktoren f_i zu versehen. Hier wurden die Meßwerte korrigiert.

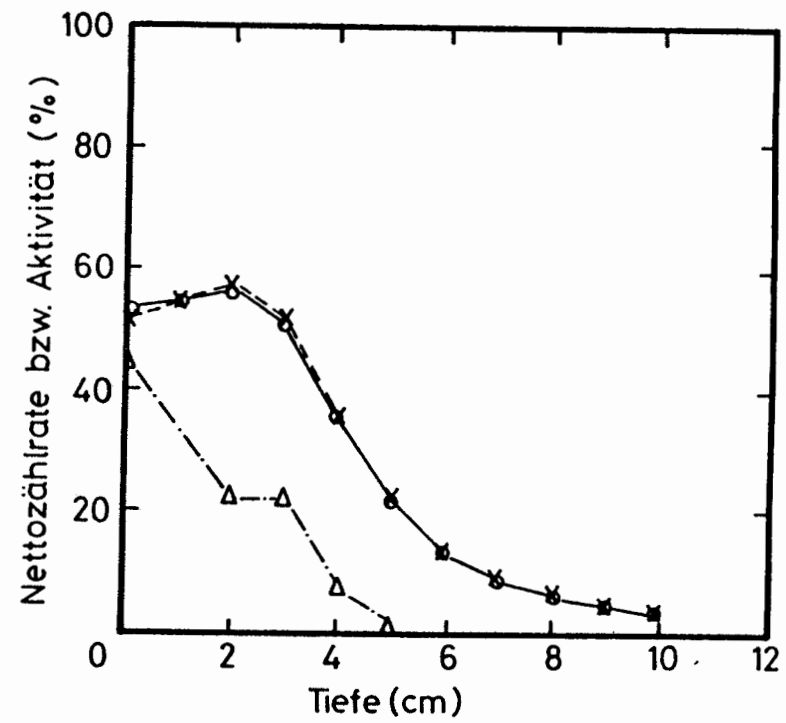
Da die Meßwerte m_i und die Matrix (w_{ij}) bekannt sind und die Matrixinversion vom Computer ausgeführt wird, erscheint die Berechnung der Aktivitäten a_j unkompliziert. Tatsächlich zeigt sich aber, daß die Meßgenauigkeit sowohl der Eichfaktoren e_i als auch der Meßwerte m_i sehr hoch sein muß, damit nach der Matrixinversion die Aktivitäten in den tiefen Bodenschichten zu Null werden. Im allgemeinen ergeben sich auch in sehr tiefen Bodenschichten, in die mit Sicherheit das Nuklid noch nicht vorgedrungen sein kann, unsinnig hohe und dazu noch alternierend positive und negative Aktivitäten (die Summe der a_j muß = 1 sein). Diese Divergenzen können zwar durch Manipulation der Meßwerte innerhalb ihrer Fehlergrenzen behoben werden, doch erfordert dies einen hohen Zeitaufwand.

Die Inversion der Matrix (w_{ij}) vereinfacht sich wesentlich, wenn nur $e_1 \neq 0$ ist und alle anderen $e_i = 0$ sind, d.h. (w_{ij}) eine trigonale Matrix ist. Dann können die a_j durch relativ unkomplizierte Verfahren, die nicht zu Divergenzen führen, aus den m_i berechnet werden. Ein solcher Fall liegt bei sehr schmalen Eichkurven vor, was bei den von uns verwendeten Kollimatorschlitz selbst mit dem 5-mm-Schlitz nicht zutrifft. MCFARLANE et al. (1975) haben auf diese Weise die Meßwerte eines "in situ soil gamma analyzer" (Kollimatorschlitz 3 mm) umgerechnet.

Im allgemeinen Fall, wenn für $i > 1$ die $e_i \neq 0$ sind, ist es zweckmäßig, die a_j nicht direkt nach Gl. (12) zu berechnen, sondern durch Einsetzen von geeigneten Werten für a_j in Gl. (11) Meßwerte m_i zu berechnen, die mit den gemessenen Scannerwerten im Rahmen der Fehlergrenzen übereinstimmen. Dabei werden die richtigen a_j durch Probieren gefunden. Dieses "Trial & error" genannte Verfahren, das seit vielen Jahren mit Erfolg auch von M.J. FRISSEL, Institut for Atomic Sciences in Agriculture, Wageningen, auf derartige Probleme angewandt wird, vermeidet die Problematik der Matrixinversion und führt nach einiger Übung rasch zum Ziel. Im Beispiel Abbildung 17 ist 1 Tag nach Nuklid-Aufgabe die Übereinstimmung zwischen gemessenen und berechneten Scannerwerten noch nicht optimal, was aber auf die Oberflächen-Problematik zurückzuführen ist. Wenn das Nuklid ein wenig in den Boden vorgedrungen ist (Abb. 17b, 131 Tage nach Aufgabe), ist die Übereinstimmung befriedigend.



a) 1 Tag nach Nuklid-Aufgabe



b) 131 Tage nach Nuklid-Aufgabe

Abb. 17 Umrechnung der Scanner-Meßwerte in die Aktivitätsverteilung.
 Säule: T6 Nuklid: ^{137}Cs

- o-- Scanner-Meßwerte
- x- berechnete Meßwerte
- Δ-- vorgegebene Aktivitäten

5. Ergebnisse und Diskussion

5.1 Schüttelversuche

5.1.1 Standardmessungen

Mit der in 4.1.5 angegebenen Arbeitsvorschrift erhielten wir für die nach 4.1.3a vorbereiteten Bodenhorizonte die in der Tabelle 2 aufgeführten Ergebnisse, die selbstverständlich nur unter den experimentellen Voraussetzungen des verwendeten Verfahrens gelten.

Tab.2: Die in Schüttelversuchen gemessenen Verteilungskoeffizienten K_d (cm^3/g) der Radionuklide Sr, J, Cs und Ce für die nicht landwirtschaftlich genutzten Böden

Boden	Horizont	^{85}Sr	^{131}J	^{137}Cs	^{144}Ce
BRÜNKENDORF	A _h	110	10	60	170
	B _v	3	7	200	110
	BC	1,4	1,6	360	120
	C	1,6	0,2	390	380
GORLEBEN	O	31	57	320	1250
	A _h	80	16	70	220
	E	8	2,3	90	110
	B _{h,fe}	20	80	14	450
	B _{fe}	1	90	120	160
	BC	0,9	9	700	140
TREBEL	C	0,5	1,1	1020	180
	O	8	110	350	1600
	A _h	30	2,1	120	130
	C	0,8	0,8	840	50

Alle Werte beziehen sich auf demineralisiertes Wasser als Lösungsmittel. Die pH-Werte schwankten für J zwischen 5 und 7, bei Sr, Cs und Ce zwischen 4 und 5.

Nach Eliminierung methodischer Fehler (z.B. beim Schütteln) betrug der Variationskoeffizient bei jeweils 4 Proben für die verschiedenen Bodenhorizonte zwischen 10 und 30%. Wegen der Vierfachbestimmung sind der Streubereich und der Vertrauensbereich bei einer statistischen Sicherheit von 95% um den Faktor 3,2 bzw. 1,6 größer als die Standardabweichung. Diese Fehler werden durch Inhomogenitäten des Probenmaterials und den eigentlichen Meßfehler verursacht und beinhalten nur die Reproduzierbarkeit (Präzision) des K_d -Werts, nicht die Genauigkeit. Inwieweit diese K_d -Werte die tatsächliche Ausbreitung der Radionuklide im Boden, die ja ein dynamischer Prozeß ist, beschreiben, wird in Abschn. 5.3 diskutiert.

Aus der Tabelle lassen sich folgende Aussagen herleiten: Die Nuklide Cs und Ce werden im allgemeinen stärker von den untersuchten Böden sorbiert als Sr und J. Dies gilt insbesondere für die BC- und C-Horizonte aller drei Probenahmestellen, bei denen die K_d -Werte von Sr und J um $1 \text{ cm}^3/\text{g}$ herum liegen (Ausnahme: $K_d\text{-J} = 9$ für Gorleben BC), während die K_d -Werte von Cs und Ce die Größenordnung 100 oder sogar $1000 \text{ cm}^3/\text{g}$ haben. Bei den O- und A_h -Horizonten ist auch die Sorption von Sr und J höher, jedoch meist nicht so hoch wie die von Cs und Ce. Vergleicht man die K_d -Werte der verschiedenen Horizonte eines Bodens, so werden Sr und J in den C-Horizonten um Größenordnungen weniger adsorbiert als in den A_h -Horizonten. Die K_d -Werte von Cs und Ce schwanken innerhalb eines Bodens nicht so stark wie bei Sr und J und liegen etwa bis zum Faktor 10 auseinander. Auffallend sind die sehr hohen K_d -Werte von Ce in den O-Horizonten (>1000). Zwischen den Probenahmestellen bestehen keine gravierenden Unterschiede, was die Größenordnung der K_d -Werte anbelangt. Die Horizonte $B_{h,fe}$ und B_{fe} von Gorleben nehmen eine gewisse Sonderstellung ein.

Die Größenordnung der von uns gemessenen Werte liegt im Rahmen der von anderen Autoren angegebenen Werte ([REDACTED])

[REDACTED]

Für die beiden Ackerböden ergaben sich aus Standardmessungen folgende Werte:

Tab.3 Verteilungskoeffizienten für Sr, Cs, J und Ce sowie pH in der Gleichgewichtslösung für zwei Ackerböden (Parabraunerde aus Eschweiler und Podsol aus Gorleben)

		Nuklid			
		Sr	J	Cs	Ce
Parabraun- erde	K_d (cm ³ /g)	40	8	1750	1500
	pH	6,6	7,1	7,3	7,1
Podsol	K_d (cm ³ /g)	40	20	250	400
	pH	6,5	5,8	6,1	5,6

Vergleicht man die K_d -Werte der Ackerböden mit den entsprechenden Werten in den A_h -Horizonten der ungestörten Bodenprofile, so sieht man, daß insbesondere Ce und Cs und in geringerem Ausmaß auch Sr von den Ackerböden stärker sorbiert wurde. Für J sind keine nennenswerten Unterschiede zu erkennen. Bei den Ackerböden ist allerdings zu berücksichtigen, daß durch eine Düngung mit Kalium oder Kalzium die Sorption der Radionuklide in allen untersuchten Böden verändert werden kann.

5.1.2 Einfluß der Fremdionen Kalzium und Kalium

Um den Einfluß der Düngung auf die Sorption der Radionuklide zu erfassen, wurden an den Ackerböden und, zum Vergleich,

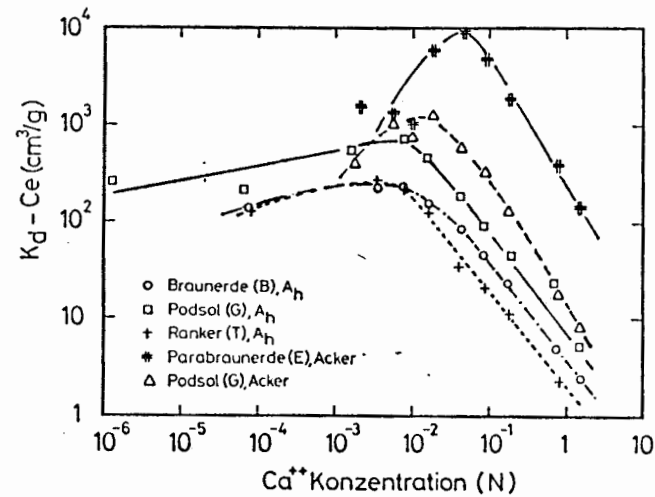
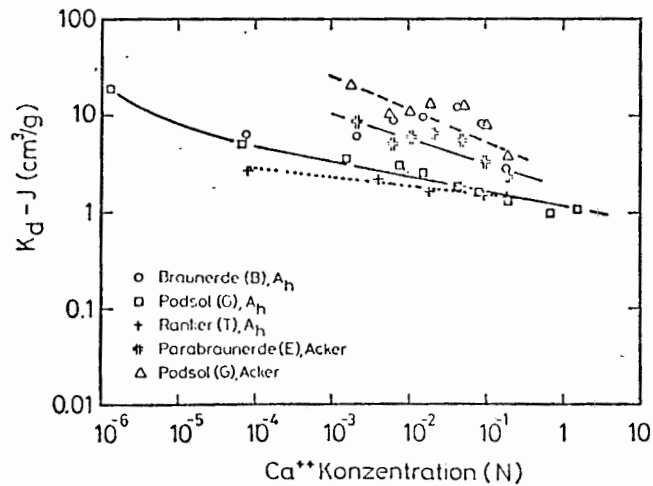
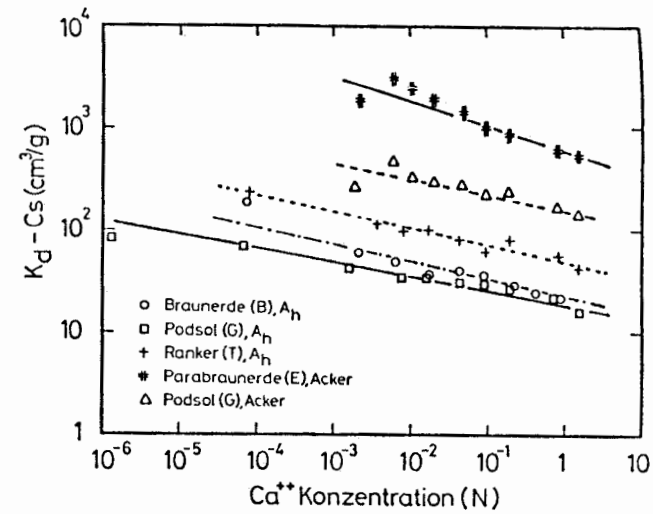
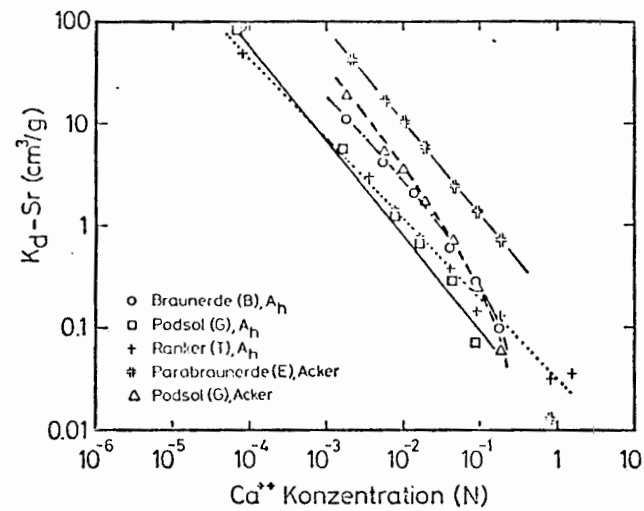


Abb. 18 Einfluß der Kalziumionen-Konzentration auf die K_d -Werte von Sr, Cs, J und Ce in den untersuchten Böden. Die Konzentration der Ca-Ionen wurde in der Lösung nach Erreichen des Sorptionsgleichgewichts mittels Atomabsorptions-Spektrometrie bestimmt.

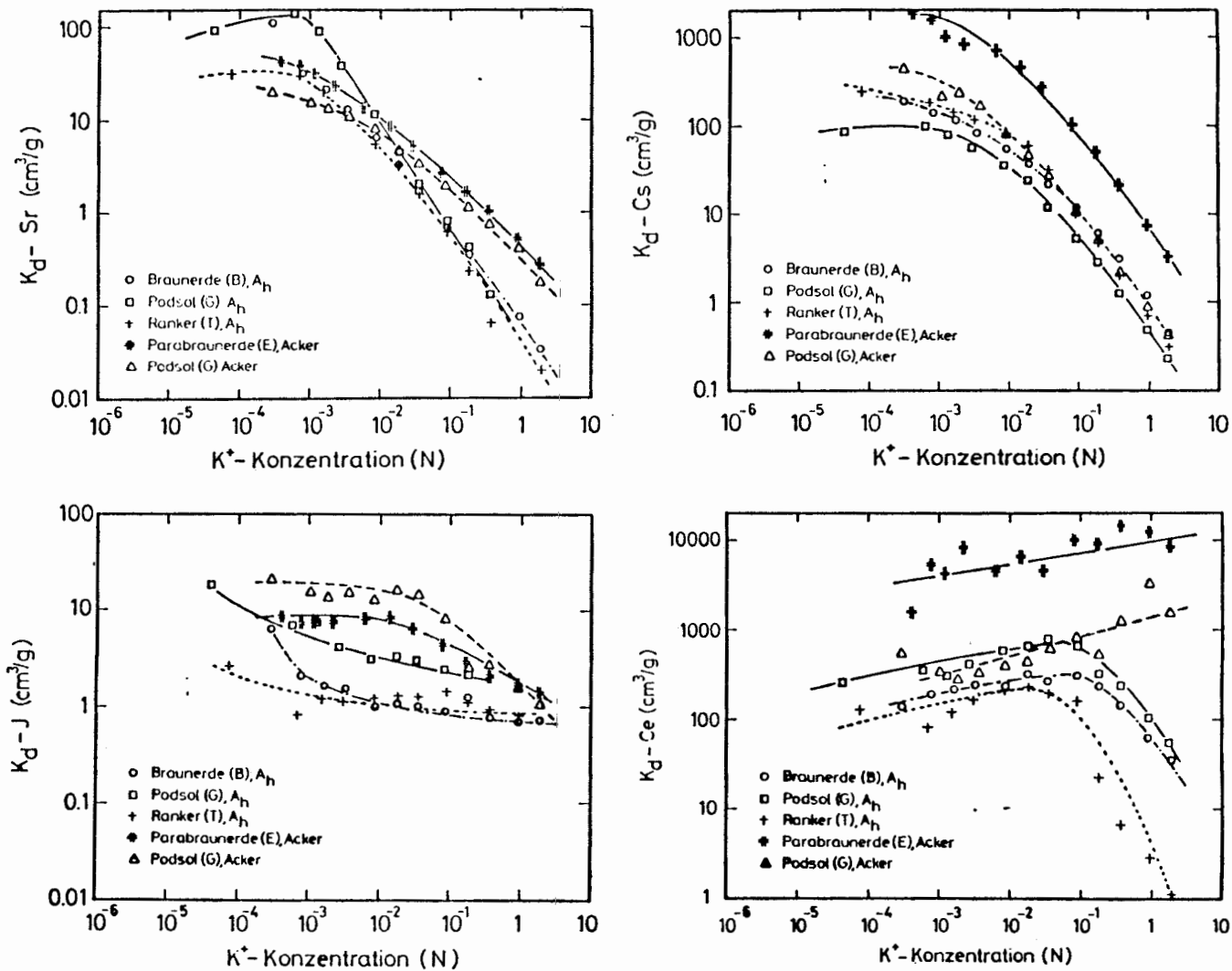


Abb. 19 Einfluß der Kaliumionen-Konzentration auf die K_D -Werte von Sr, Cs, J und Ce in den untersuchten Böden. Die Konzentration der K-Ionen wurde in der Lösung nach Erreichen des Sorptionsgleichgewichts mittels Atomabsorptions-Spektrometrie bestimmt.

auch an den anderen Böden die K_d -Werte bei Zugabe von Kalium und Kalziumionen gemessen. Die K- bzw. Ca-Ionen-Konzentration in der Gleichgewichtslösung wurde dabei nicht aus der zugegebenen Menge dieser Ionen berechnet, sondern nach Einstellung des Sorptionsgleichgewichts in der Lösung nach Abzentrifugieren mittels Atomabsorption gemessen. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 18 und 19 zusammengestellt.

Die Sorption von Sr wird durch Zugabe von Kalzium und Kalium-Ionen sehr stark herabgesetzt. In ähnlicher Weise wird auch die Sorption von Cs durch Zugabe von K und in geringerem Ausmaß durch Ca-Ionen erniedrigt. Erwartungsgemäß wird die Sorption von Jod, da als Anion vorhanden, weder durch Ca- noch durch K-Ionen wesentlich beeinflusst. Bei Cer ist in erster Linie ein Einfluß von Ca-Ionen zu bemerken, weniger von K-Ionen.

5.2 Säulenversuche

5.2.1 Die hydrodynamischen Kenngrößen der Säulen

Nach dem Aufstellen der 8 Bodensäulen im Labor und Beginn der Beregnung mit je 800 ml/Woche wurde wöchentlich der Durchfluß, der pH-Wert und die Leitfähigkeit des Sickerwassers, das in einer Plastikflasche am unteren Ende der Säulen gesammelt wurde, gemessen. In den ersten Wochen nach der ersten Beregnung schwankte der Durchfluß WH je nach Säule zwischen 450 und 550 ml/Woche, um nach etwa einem halben Jahr auf Werte um 700 ml/Woche zu steigen. Zu dieser Zeit wurde im Labor eine Klimaanlage installiert, die den Feuchtigkeitsgehalt der Luft konstant bei ca. 55% hält. Der Anstieg der Durchflußmenge ist also auf eine Verringerung der Verdunstung von etwa 30% auf 10% zurückzuführen. Seither ist der Durchfluß konstant.

Der pH-Wert des Sickerwassers fiel bei allen Säulen von ursprünglich 7 auf Werte zwischen 4 und 5 und änderte sich dann nicht mehr. Das unterschiedlichste Verhalten, sowohl im zeit-

lichen Verlauf als auch von Säule zu Säule, weist die Leitfähigkeit des Sickerwassers auf. Nachdem die Werte über längere Zeit unsystematisch schwankten, scheinen sie sich nun jedoch mit leicht sinkender Tendenz zu stabilisieren. Dies läßt darauf schließen, daß das Herauslösen von Ionen aus dem Boden einen Gleichgewichtszustand erreicht hat.

Etwa ein halbes Jahr nach Aufstellen der Säulen wurde zur Bestimmung der hydrodynamischen Kenngrößen - Abstandsgeschwindigkeit v_a , longitudinaler Dispersionskoeffizient D_L und Wassergehalt θ - auf alle Säulen jeweils 22.8 μCi Tritium aufgebracht. Dabei wurde der Boden zunächst mit je 400 ml Regenwasser angefeuchtet, das Tritium in je 200 ml Regenwasser aufgebracht und anschließend nochmals mit je 200 ml Regenwasser nachberechnet. Die weitere Berechnung wurde wie bisher fortgesetzt. Im Sickerwasser wurde wöchentlich die Tritiumkonzentration (durch das Institut für Radiohydro-metrie der GSF) bestimmt. Als Beispiel ist in Abbildung 20 die bei der Säule B3 gefundene Tritiumkonzentration wiedergegeben.

Bei allen Säulen erschien das Tritium erstmals nach etwa 40 - 50 Tagen im Sickerwasser, erreichte seinen Maximalwert nach etwa 100 - 150 Tagen und hatte nach rund 300 Tagen die Säule verlassen. Die maximale Tritiumkonzentration am Peak lag je nach Säule zwischen 1 und 2 nCi/ml Sickerwasser.

Um aus diesen Werten die hydrodynamischen Kenngrößen der Bodensäulen zu bestimmen, wurde das in Abschn. 2.2 näher erläuterte kinetische Modell der Ausbreitung von Radionukli-den im Boden verwendet ([redacted] 1978). Geht man davon aus, daß Tritium sich wie ein idealer Tracer verhält, d.h. nicht vom Boden sorbiert wird, so ist der Verteilungskoeffizient K_d in diesem Fall gleich Null zu setzen. Die experimentell beobachteten Tritium-Durchgangskurven können dann mittels Gl. (6) in Abschn. 2.2 beschrieben werden. Durch Anpassung der berechneten Kurve (durchgezogen, s. Abb. 20) an die experimentellen

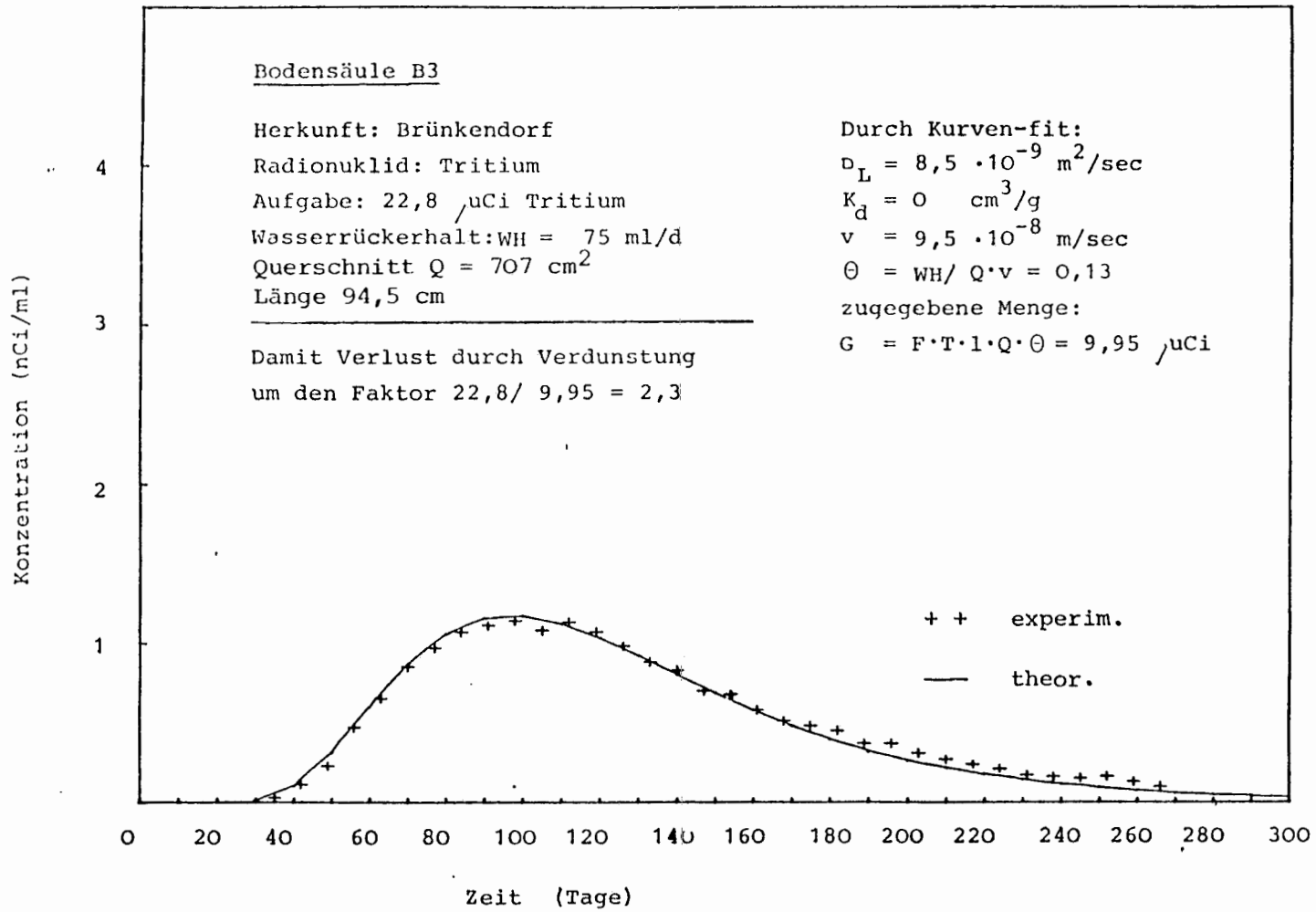


Abb. 20 Tritiumkonzentration in der Bodensäule B3 als Funktion der Zeit

Werte (+ + +) können dann folgende in Gl.(6) auftretenden Größen, soweit sie nicht schon bekannt sind, bestimmt werden:

- mittlere Trockenraumdichte ρ : 1,25 g/cm³ (bekannt);
- Verteilungskoeffizient $K_d = 0$ cm³/g bei Verwendung von Tritium;
- Dicke der Oberflächenschicht $l = 0,1$ cm (geschätzt, keine kritische Größe; siehe [redacted] 1978, S. 49;
- Dispersionskoeffizient D_L erhalten durch Anpassung, bestimmt die Breite der Durchgangskurve.
- Sickerwassergeschwindigkeit v_a in den wassergefüllten Poren des Bodens: erhalten durch Anpassung; bestimmt die Lage des Peaks der Durchgangskurve.
- Zerfallskonstante λ von Tritium: bekannt;
- Aufgabegeschwindigkeit F von Tritium auf die Bodenoberfläche: erhalten durch Anpassung; bestimmt neben D_L die Höhe des Peaks der Durchgangskurve;
- Zeitspanne T , während der Tritium aufgegeben wurde: bekannt;
- Länge L der Bodensäule: bekannt.

Bei allen Säulen wurde eine gute Anpassung der experimentellen Werte mit den nach Gl.(6) berechneten Kurven erhalten.

Nachdem auf diese Weise D_L und v_a bestimmt sind, läßt sich der mittlere Wassergehalt θ der Bodensäulen aus der Beziehung

$$\theta = WH / Q \cdot v_a$$

berechnen, wobei Q der bekannte Querschnitt der Bodensäulen (707 cm²) ist und WH der Wasserrückhalt am Säulenende in ml/d (experimentell bestimmt) bedeuten. Nach Berechnung von θ läßt sich nun auch die gesamte in die Oberflächenschicht aufgebraachte Tritiumaktivität G gemäß

$$G = F \cdot T \cdot l \cdot Q \cdot \theta$$

bestimmen und mit der experimentell aufgebraachten Tritiumaktivität vergleichen.

schließlich läßt sich, da in unserem Falle der Diffusionskoeffizient D_d sehr klein gegenüber dem beobachteten Dispersionskoeffizienten D_L ist, nach Gl. (8) (Abschnitt 2.2) die Dispersionslänge L_D gemäß

$$L_D = D_L / v_a$$

berechnen.

Die nach diesem Auswertungsschema erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefaßt. Dabei erkennt man, daß die Schwankungen der hydrodynamischen Kenngrößen der einzelnen Säulen für einen bestimmten Bodentyp nur relativ gering sind. Damit scheinen alle Säulen für Ausbreitungsuntersuchungen von Radionukliden brauchbar zu sein. Ein Vergleich der Bodensäulen von verschiedenen Herkunftsorten zeigt ferner, daß die hydrodynamischen Kenngrößen der Böden aus Gorleben (G1, G2, G4) sehr ähnliche Werte wie diejenigen aus Trebel (T6, T7) aufweisen. Etwas höhere Dispersionskoeffizienten und Dispersionslängen zeigen demgegenüber die Bodensäulen aus Brünkendorf (B2, B3, B4). Insgesamt gesehen liegen alle Werte innerhalb der Größenordnung von anderen Autoren an ähnlichen Böden gefundenen Werten.

In der vorletzten Spalte der Tabelle 4 sind die Verluste an Tritium durch Verdunstung, wie sie nach dem oben beschriebenen Kurven-Anpassungsverfahren berechnet wurden, angeführt. Wie man sieht, geht hierbei im Mittel um den Faktor 1,8 Tritium verloren und erscheint nicht mehr im Ausfluß der Säulen. Zum Vergleich sind in der letzten Spalte der Tabelle noch die davon unabhängig experimentell bestimmten Wasserverluste durch Verdunstung angegeben. Sie ergeben sich für jede Säule aus der bekannten Beregnungsmenge (800 ml/Woche) und dem jeweils am Säulenende gemessenen Wasserrückhalt (dritte Spalte der Tabelle). Der Vergleich zeigt, daß bei allen Säulen im Mittel etwas mehr Tritium als Wasser durch Verdunstung verloren ging. Der Grund liegt darin, daß für alle Säulen der Wasserrückhalt im Laufe der Zeit erheblich anstieg, obwohl die Beregnungsmenge konstant blieb. Dieses Verhalten ist auf die ursprünglich niedrige relative Luftfeuchte in den Laborräumen zurückzuführen, die erst im

Tabelle 4 Hydrologische Parameter der verschiedenen Bodensäulen:

Länge L ; Wasserrückhalt WH; Dispersionskoeffizient D_L ; Sickerwassergeschwindigkeit v_a ;
 Dispersionslänge L_D ; Wassergehalt θ ; Tritium Verdunstung; Wasserverdunstung.

Bodensäule	L cm	Wasserrückhalt ml/d	D_L m^2/sec	v_a m/sec	L_D m	θ	Tritium- Verdunstungs- Faktor	Wasser- Verdunstungs- Faktor
G1	88,0	84,4	$2,7 \cdot 10^{-9}$	$7,5 \cdot 10^{-8}$	$3,6 \cdot 10^{-2}$	0,18	1,6	1,4
G2	81,5	86,3	$2,4 \cdot 10^{-9}$	$7,2 \cdot 10^{-8}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$	0,20	1,6	1,3
G4	85,0	81,0	$3,0 \cdot 10^{-9}$	$6,9 \cdot 10^{-8}$	$4,3 \cdot 10^{-2}$	0,19	1,7	1,4
B2	86,5	90,0	$4,0 \cdot 10^{-9}$	$6,9 \cdot 10^{-8}$	$5,8 \cdot 10^{-2}$	0,21	1,7	1,3
B3	94,5	75,0	$8,5 \cdot 10^{-9}$	$9,5 \cdot 10^{-8}$	$8,9 \cdot 10^{-2}$	0,13	2,3	1,5
B4	95,0	86,3	$6,0 \cdot 10^{-9}$	$9,8 \cdot 10^{-8}$	$6,1 \cdot 10^{-2}$	0,14	1,7	1,3
T6	81,8	83,0	$3,2 \cdot 10^{-9}$	$6,9 \cdot 10^{-8}$	$4,6 \cdot 10^{-2}$	0,19	2,2	1,4
T7	82,5	83,0	$2,7 \cdot 10^{-9}$	$6,0 \cdot 10^{-8}$	$4,4 \cdot 10^{-2}$	0,23	2,0	1,4

geschätzter Fehler für D_L , v_a und L_D : ca. 2 - 5% rel.

Herbst 1978 durch den Einbau einer Klimaanlage auf 55% angehoben werden konnte. Da das Tritium noch vor dem Einbau der Klimaanlage aufgegeben wurde, unterlag es daher - da es sich zu dieser Zeit noch in den obersten Bodenschichten befand - einer relativ starken Verdunstung. Der mittlere Wasserrückhalt, erhalten aus den einzelnen (42) Wochenwerten während der Tritiumpassage, berücksichtigt diese Tatsache jedoch nicht und führt so zu einem Verdunstungsfaktor, der nicht für die Tritiumverdampfung repräsentativ ist. Zusätzliche Tritiumverluste sind aber auch noch durch Isotopenaustausch von Tritium mit dem Wasserdampf der Luft vorhanden.

5.2.2 Die Retardationsfaktoren

Nach der Bestimmung der hydrodynamischen Parameter wurden die zu untersuchenden Radionuklide auf die Säulen aufgebracht: ^{131}J , ^{85}Sr , ^{137}Cs und ^{144}Ce .

Der Beobachtungszeitraum für die Jod-Säulen war wegen der kurzen Halbwertszeit von ^{131}J auf 3 Monate beschränkt. In dieser Zeit änderte sich innerhalb der Fehlergrenzen nichts, die aufgebrachte Aktivität verblieb in der Oberflächenschicht der Säulen. Es wurde auch versucht, Jod im Sickerwasser nach Fällung mit AgNO_3 (unter Zusatz von inaktivem Jod) nachzuweisen, was jedoch erwartungsgemäß nicht gelang.

Für die anderen Nuklide konnte bis zum Ende der Untersuchungszeit, also über mehr als 2 Jahre, eine mehr oder weniger deutliche Verlagerung der Aktivität beobachtet werden, die allerdings auch in günstigen Fällen nur einige Zentimeter betrug. Einen qualitativen Eindruck von der Nuklidwanderung vermittelt das kontinuierliche Abscannen der Säule, wie es in Abbildung 21 für die Cäsium-Säule T6 gezeigt ist. Die Kurve der Bruttozählrate des Cäsium-Peaks verlagert im Laufe der rd. 800 Tage ihr Maximum um etwa 2 cm und wird deutlich breiter. Auffallend ist die (auch bei anderen Säulen festzustellende) Asymmetrie der Bruttoreate innerhalb einer Drehperiode der Säule (Abstand zweier Minima in Abb. 21). Den geringsten An-

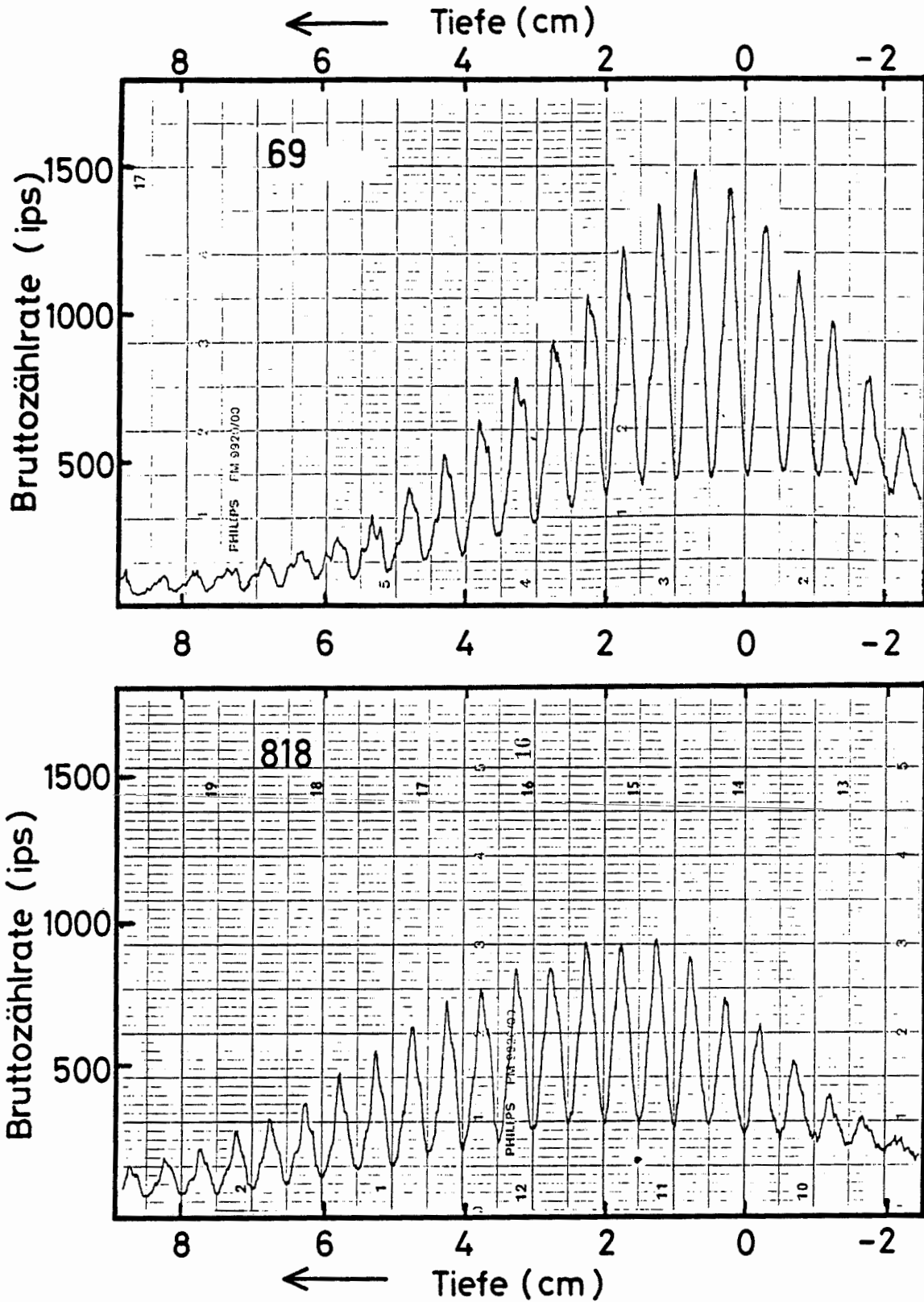


Abb. 21 Kontinuierliches Abscannen der Säule T6
Nuklid: Cs
Parameter: Tage nach Nuklidauflage

teil an dieser Asymmetrie hat die Unwucht der Säule, die einen um etwa 5 mm schwankenden Abstand zwischen Säulenrand und Detektor bedingt. Die wesentlichen Ursachen sind vermutlich 1.) der trotz der hohen Kanülenzahl ungleichmäßige Nuklid- auslauf aus dem Beregnungsaufsatz, 2.) die Unebenheit der Oberfläche und 3.) Inhomogenitäten des Bodens. Da der Detektor vornehmlich die in den Randbezirken der Säule lagernde Aktivität registriert, können bei Unebenheiten der Oberfläche und Drehung der Säule komplizierte Asymmetrien der Strahlungsrate im Detektor entstehen. Zusammen mit den Inhomogenitäten des Bodens (und damit asymmetrischer Abschirmung der Aktivitäten) bewirken diese Phänomene den sich von Periode zu Periode allmählich ändernden Verlauf der Zählrate.

In Abbildung 21 ist auch zu erkennen, daß die vom Scanner gemessene Bruttozählrate nicht unmittelbar die Aktivitätsverteilung des Nuklids wiedergibt: sowohl über der Bodenoberfläche (negative Werte für die Tiefe) als auch weit unterhalb der Oberfläche wird Strahlung gemessen, die keinesfalls aus der betreffenden Tiefe stammen kann; vielmehr "sieht" der Scanner an diesen Stellen auf Grund des Öffnungswinkels des Kollimators noch teilweise die in den ersten 5 - 6 cm der Säule konzentrierte Aktivität.

Nach Umrechnung der Scannermeßkurven in Aktivitätskurven (s. Abschnitt 4.2.4) wurden die Tiefenverteilungen der Nuklidaktivität sowohl mit dem analytisch lösbaeren Zwei-Schichten-Modell (Abschn. 2.2) als auch mit dem numerischen Modell (Abschn. 2.3) ausgewertet. Da die hydrodynamischen Parameter der Säulen bestimmt sind, können in diesen Modellen nur noch die Retardationsfaktoren frei gewählt werden. Die analytische Lösung wurde dabei zur Kontrolle des numerischen Modells herangezogen, da sie nur anwendbar war, solange die Nuklide im ersten Horizont der jeweiligen Säule verblieben. In diesen Fällen zeigte sich eine gute Übereinstimmung der durch Kurvenanpassung erhaltenen Retardationsfaktoren.

Als Beispiel für die Anwendung des numerischen Modells sind in Abbildung 22 vier Aktivitätsprofile der Säule G2 zu ver-

schiedenen Zeiten nach der Nuklidauflage ausgewertet. Die Retardationsfaktoren sind hier bereits nach Gl.(4) (Abschn. 2.1) in Verteilungskoeffizienten umgerechnet, da die Trockenraumdichte und der Wassergehalt des Bodens bekannt sind.

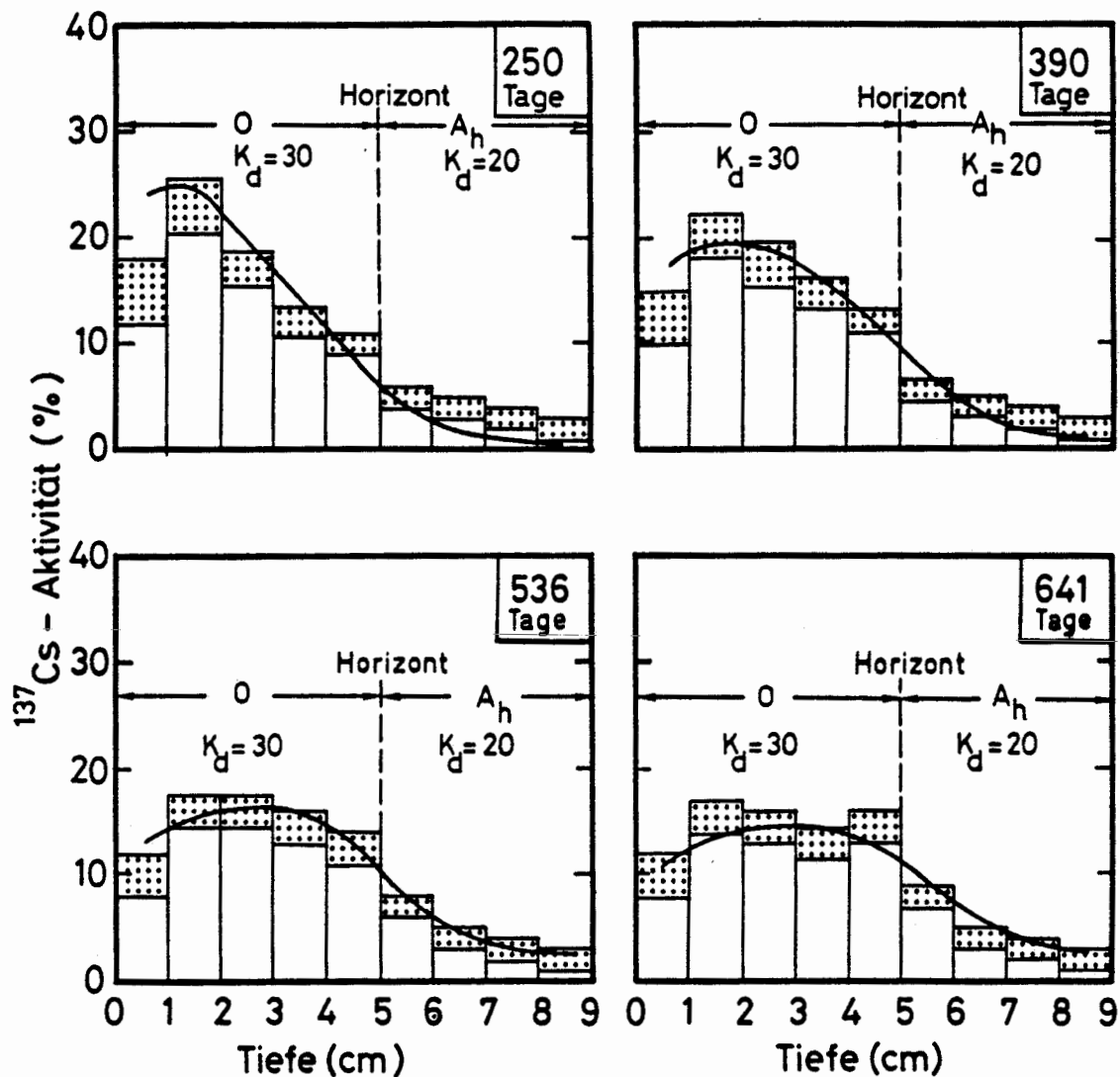


Abb. 22 Ermittlung der K_d -Werte aus Säulenversuchen durch Anpassung der experimentell beobachteten Tiefenverteilung des Radionuklids (Balken mit Fehlerbereich) an eine berechnete (ausgezogene Kurve)

Die bei der Auswertung mit dem numerischen Modell erhaltenen Retardationsfaktoren sind in der Tabelle 5 zusammengestellt. Die Fehler der R_d -Werte liegen im Mittel bei ca. 20%, können in Einzelfällen (stark inhomogener Boden) aber auch erheb-

lich darüber liegen. Die aus den R_d -Werten über die Beziehung (4) berechneten K_d -Werte der Säulenversuche sind in der alle Ergebnisse zusammenfassenden Tabelle 6 den K_d -Werten aus Schüttelversuchen gegenübergestellt (s. Abschn. 5.3).

Wie bei den Schüttelversuchen zeigte sich, daß Sr, Cs und Ce in den O-Horizonten relativ stark sorbiert werden, insbesondere Ce. Auch in den A_h -Horizonten ist die Sorption der Nuklide Cs und Ce hoch, so daß sie bisher nicht in tiefere Horizonte vorgedrungen sind und auch nicht im Sickerwasser der Säulen nachgewiesen werden konnten. Dasselbe gilt für Sr in der Säule aus Gorleben. Lediglich bei den mit Sr beaufschlagten Säulen aus Brünkendorf und Trebel trat ca. 6-8 Monate nach Nuklidabgabe geringe, aber mit dem Anti-Koinzidenz-Spektrometer von [REDACTED] (Institut für

Tab. 5 Die aus Säulenversuchen berechneten Retardationsfaktoren R_d der Radionuklide Sr, Cs und Ce für die nicht landwirtschaftlich genutzten Böden. Es sind nur die Horizonte aufgeführt, in denen R_d -Werte berechnet werden konnten.

Boden	Horizont	^{85}Sr	^{137}Cs	^{144}Ce
BRÜNKENDORF	A_h	50	25000*	25000*
	B_v	12	+	+
	BC	9	+	+
GORLEBEN	O	500	180	4000
	A_h	250	90	+
TREBEL	O	210	430	-
	A_h	50	180	-
	C	3	+	-

*) Wert beinhaltet auch den im Bewuchs vorhandenen Anteil des Radionuklids und darf daher nicht nur dem Boden zugeordnet werden.

+) Wert konnte nicht ermittelt werden, da das Radionuklid innerhalb des Untersuchungszeitraums noch nicht bis in diese Tiefe wanderte.

-) nicht gemessen.

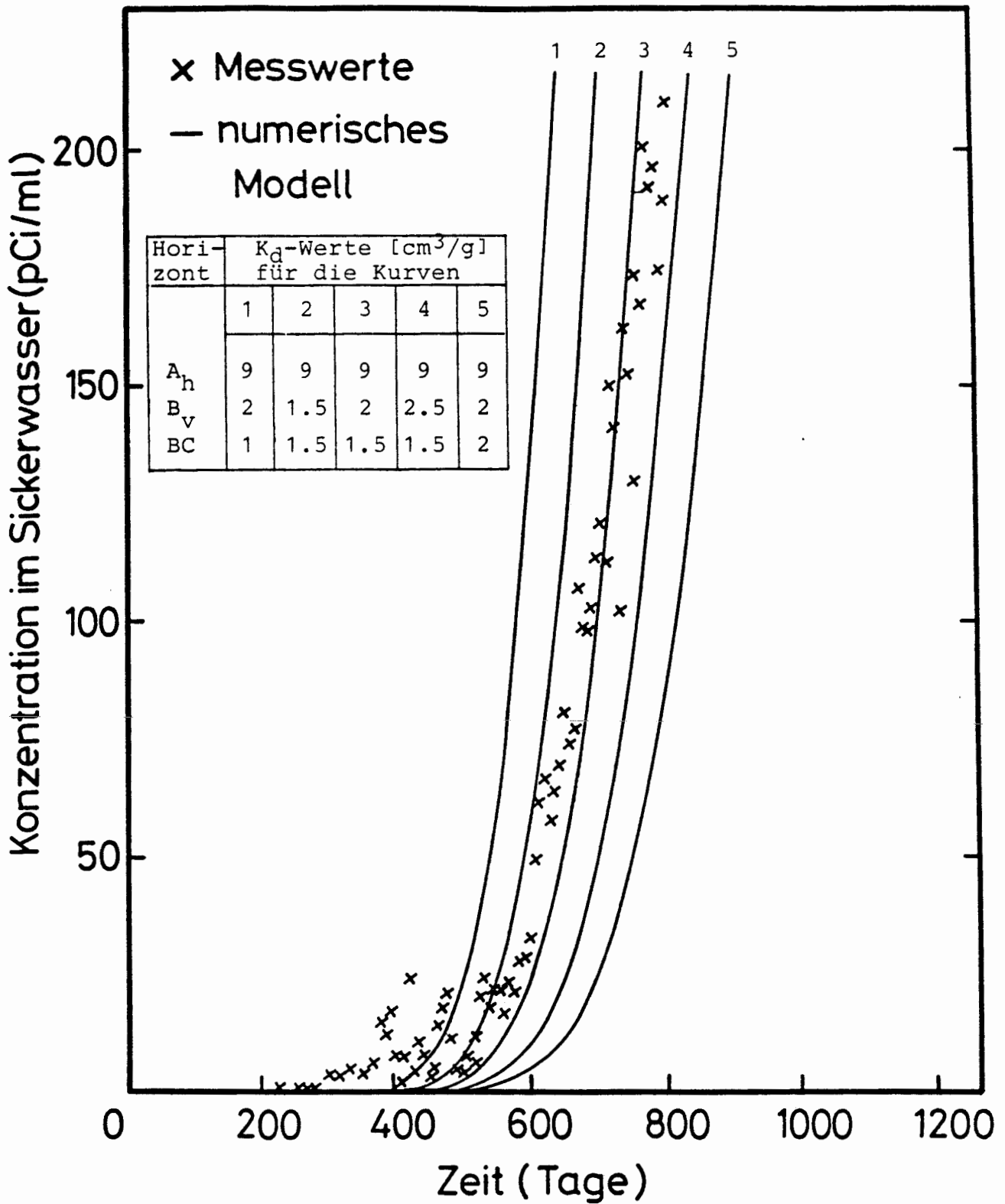


Abb. 23 Strontiumkonzentration im Sickerwasser der Säule B2. Vergleich der Meßwerte mit theoretischen Durchbruchskurven, die im Rahmen des numerischen Modells mit den aus der Tiefenverteilung der Nuklidaktivität gewonnenen K_d -Werten berechnet wurden.

Strahlenschutz, GSF) noch meßbare Nuklidaktivität im Sickerwasser der Säulen auf. In Abbildung 23 sind als Beispiel die bisherigen Meßwerte der Säule B2 gezeigt. Die theoretischen Durchbruchkurven wurden im Rahmen des numerischen Modells mit den aus der Tiefenverteilung der Strontium-Aktivität im oberen Teil der Säule gewonnenen R_d - bzw. K_d -Werten berechnet. Die K_d -Werte wurden für die verschiedenen Kurven innerhalb ihrer Fehlergrenzen verändert. Die auf Grund der Scanner-Messungen zu erwartenden Durchbruchkurven geben den Verlauf der Meßwerte sowohl qualitativ als auch quantitativ wieder. Allerdings konnte im bisherigen Untersuchungszeitraum erst die Anstiegsflanke der Durchbruchkurven gemessen werden.

5.3 Vergleich der K_d -Werte aus Schüttel- und Säulenversuchen

Experimentell ermittelte K_d - bzw. R_d -Werte dienen letztlich dazu, um mit Hilfe von Ausbreitungsmodellen langfristige Vorhersagen über die Ausbreitung von Radionukliden im Boden zu ermöglichen. Daher ist es notwendig zu wissen, inwieweit die nach verschiedenen Verfahren ermittelten K_d -Werte übereinstimmen. Die in Schüttel- und Säulenversuchen ermittelten Ergebnisse von den Böden aus der Umgebung von Gorleben sind zusammen mit ihren hydrodynamischen Parametern in der Tabelle 6 aufgeführt. Für den Vergleich von Säulen- und batch- K_d -Werten eignen sich insbesondere die Untersuchungen mit Cs und Sr, da für diese Nuklide die K_d -Werte von mehreren Horizonten bestimmt werden konnten. Die Ergebnisse sind schematisch in Abbildung 24 gegenübergestellt.

Für Sr liegen im O-Horizont, also dem Auflagehorizont, der überwiegend Rohhumus mit nur teilweise zersetzten Pflanzenresten enthält, die K_d -batch-Werte erheblich (Faktor 3-5) unter den entsprechenden K_d -Säulen-Werten. Möglicherweise wird dies durch eine teilweise Löslichkeit des überwiegend hochpolymeren organischen Materials bei den batch-Versuchen bedingt, die eine eindeutige Phasentrennung zwischen sorbiertem und gelöstem Anteil mittels Zentrifugation erschwert. In den reinen Humus-Horizonten (A_h) dagegen liegen die batch- K_d -Werte immer deutlich (Faktor 2-10) über den entsprechenden Säulen-Werten.

Tab. 6 Hydrodynamische Parameter und Verteilungskoeffizienten K_d (cm^3/g) aus batch- und Säulenversuchen für die untersuchten Böden.

Boden		Wasserbewegung				Radionuklidbewegung							
Forst,Weide	Horizont	effektiver Wassergehalt	Abstandige - schwind. (m/s)	Dispersionskoeff. (m^2/s)	Dispersivität (m)	K_d -Werte (cm^3/g) der Nuklide							
						Sr		J		Cs		Ce	
						Batch	Säule	Batch	Säule	Batch	Säule	Batch	Säule
Brünkendorf Braunerde	A _h	0,18	8,0	6,1 $\cdot 10^{-9}$	7,6 $\cdot 10^{-2}$	110	10	10	+	60	3000*	170	3000*
	B _v					3	2	2,4	+	200	+	110	+
	BC					1,4	1,5	2,8	+	360	+	120	+
	C					1,6	-	0,2	-	390	-	380	-
Gorleben Podsol	O	0,20	6,8 $\cdot 10^{-8}$	2,4 $\cdot 10^{-9}$	3,5 $\cdot 10^{-2}$	31	80	57	+	320	30	1250	600
	A _h					80	40	10	+	70	15	220	+
	E					8	+	44	+	90	+	110	+
	B _h fe					20	+	32	+	14	+	450	+
	B _{fe}					1	+	11	+	120	+	160	+
	BC					0,9	+	9	+	700	+	140	+
	C					0,5	+	1,1	+	1020	+	180	+
Trebel Ranker	O	0,22	6,1 $\cdot 10^{-8}$	2,7 $\cdot 10^{-9}$	4,4 $\cdot 10^{-2}$	8	40	110	+	350	70	1600	-
	A _h					30	10	2,1	+	120	30	130	-
	C					0,8	0,3	3,1	+	840	+	50	-
Ackerboden													
Gorleben Podsol	A _p	-	-	-	-	40	-	20	-	250	-	400	-
Eschweiler Parabraunerde	A _p	-	-	-	-	40	-	8	-	1750	-	1500	-

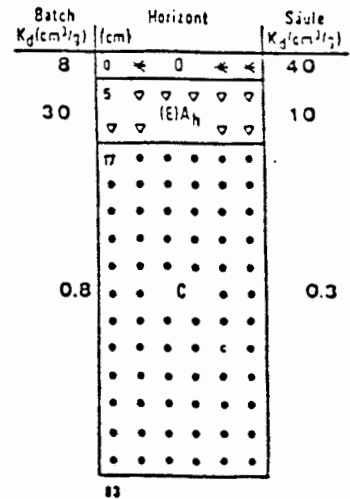
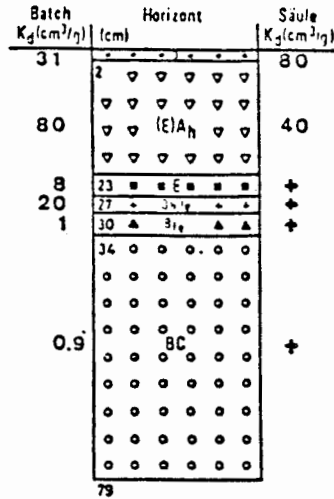
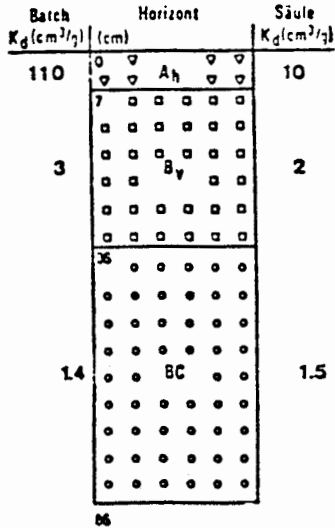
- *) Wert beinhaltet auch den im Bewuchs vorhandenen Anteil des Radionuklids und darf daher nicht nur dem Boden zugeordnet werden.
- +) Wert konnte nicht ermittelt werden, da das Radionuklid innerhalb des Untersuchungszeitraums noch nicht bis in diese Tiefe wanderte.
-) nicht gemessen.

⁸⁵Sr

B2

G4

T7

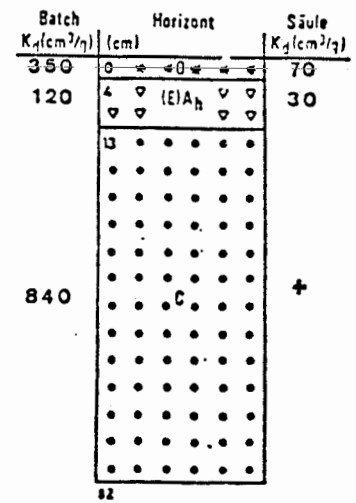
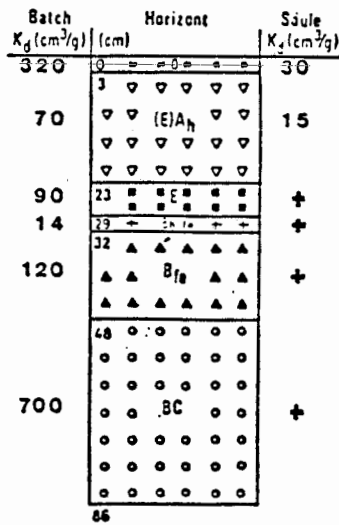
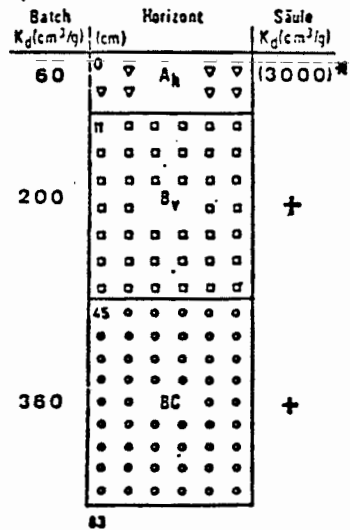


¹³⁷Cs

B4

G2

T6



- +) Werte konnten nicht ermittelt werden, da das Radionuklid innerhalb des Untersuchungszeitraums noch nicht bis in diese Tiefe wanderte.
- *) Wert beinhaltet auch den im Bewuchs vorhandenen Anteil des Radionuklids und darf daher nicht nur dem Boden zugeordnet werden.

Abb. 24 Vergleich der K_d -Werte für Strontium und Cäsium nach batch- und Säulenmessungen an den Böden von Brünkendorf (B2, B4), Gorleben (G2, G4) und Trebel (T6, T7)

Hier täuschen die batch- K_d -Werte also eine höhere Sorption vor, als sie bei der Wanderung in der Säule tatsächlich stattfindet. Möglicherweise werden hier selbst bei vorsichtigem Schütteln der Bodensuspension bei den batch-Versuchen durch Abreibeeffekte neue Sorptionsflächen freigelegt. In den BC- und C-Horizonten der Böden, bei denen die Sande überwiegen, liegen zwar auch die batch- K_d -Werte noch etwas über den Säulen- K_d -Werten, aber die Unterschiede sind hier relativ gering (maximal Faktor 2).

Für Cäsium ergibt sich ein ähnliches Bild, nur daß hier auch im O-Horizont die batch- K_d -Werte deutlich (Faktor 5-10) über den entsprechenden Säulen- K_d -Werten liegen. Eine Ausnahme stellt lediglich der A_h -Horizont aus Brünkendorf dar. Hier liegt der batch- K_d -Wert erheblich unter dem entsprechenden Säulen- K_d -Wert. Diese sehr hohe Sorption ($K_d = 3000 \text{ cm}^3/\text{g}$) darf aber nicht dem Bodenmaterial zugeschrieben werden, sondern rührt von einer starken Anreicherung des Cäsiums im Moos her, das während des Untersuchungszeitraums auf der Bodenoberfläche gewachsen war. Wie eine Aktivitätsbestimmung dieses Moooses ergab, befand sich am Ende des Säulenexperiments (nach ca. 2 Jahren) nahezu das ganze aufgegebene Cs in diesen Pflanzen.

Ein ähnliches Verhalten wurde auch an der Bodensäule aus Brünkendorf für Cer beobachtet. Dort befand sich nahezu das gesamte aufgegebene Cer am Ende des Versuchs im Moos, so daß der angegebene K_d -Wert von $3000 \text{ cm}^3/\text{g}$ nicht dem Boden zugeschrieben werden darf. Diese beiden Versuche machen daher deutlich, daß die Ausbreitung eines Radionuklids in der belebten Bodenzone noch stark vom jeweiligen Bewuchs modifiziert werden kann. Trotz dieser Oberflächenproblematik sind die K_d - bzw. R_d -Werte aus Säulenuntersuchungen sicher realistischer als solche aus Schüttelversuchen und sollten daher, soweit vorhanden, für Ausbreitungsrechnungen verwendet werden. Falls jedoch nur die Größenordnung der Wanderungsgeschwindigkeit der Radionuklide interessiert, werden im allgemeinen auch batch-Versuche ausreichen.

Zusammenfassend lassen sich grob pauschaliert für die untersuchten Bodenprofile folgende Mobilitätsreihen angeben, wobei insbesondere die Säulen-Ergebnisse verwendet wurden:

Ranker (Trebel)	$J > Sr > Ce > Cs$
Podsol (Gorleben)	$J > Cs > Ce > Sr$
Braunerde (Brünkendorf)	$J \geq Sr > Ce \geq Cs$
Ackerböden:	
Podsol (Gorleben)	$J > Sr \gg Cs > Ce$
Parabraunerde (Eschweiler)	$J > Sr \gg Ce \geq Cs$


Je nach Horizont können hierbei jedoch noch Unterschiede in der Reihenfolge auftreten. Der Grund für dieses unterschiedliche Verhalten liegt in der verschiedenen Zusammensetzung der einzelnen Böden sowie ihrer Horizonte, deren Komponenten die einzelnen Radionuklide unterschiedlich stark zu sorbieren vermögen. Da es sich bei der Sorption dieser Nuklide immer nur um Tracermengen handelte, genügen u.U. schon geringen Spuren eines Minerals oder Oxids im Boden, um die Selektivitätsreihe der Sorption zu verändern. Auf diese Weise können schon geringe Mengen bestimmter Tonminerale (z.B. Illit) - etwa Cs - durch einen speziellen Fixationsmechanismus stärker sorbieren als Sr.

Dank

Das vorliegende Forschungsvorhaben wurde im Rahmen des Projekts "Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE)" dankenswerterweise vom Bundesminister für Forschung und Technologie durch Sach- und Personalmittel gefördert. Es entstand in enger Zusammenarbeit mit dem

Institut für Angewandte Geologie der FU Berlin,
Institut für Geologie und Paläontologie der Universität Kiel,
Institut für Nukleare Entsorgungstechnik der Kernforschungsanlage Karlsruhe,
Institut für Radiohydrometrie der GSF, Neuherberg, sowie dem Institut für Wasser-, Boden-, Lufthygiene des BGA Berlin.

Für zahlreiche anregende Diskussionen danken wir den Herren

 vom
Institut für Strahlenschutz der GSF.

6. Literaturverzeichnis

AMES, L.L. Jr., & B.F. HAJEK. 1966: Statistical Analysis of Cesium and Strontium Sorption on Soils. BNWL-CC-539.

BAETSLE, L., & P. DEJONGHE. 1962: Investigations on the Movement of Radioactive Substances in the Ground. Part III: Practical Aspects of the Program and Physicochemical Considerations. IN: Proc.Conf.Ground Disposal of Radioactive Wastes, 2nd, Chalk River, Canada, September 1961. J.M.Morgan, D.K.Jamison, & J.D.Stevenson (eds.) TIL-7628, pp. 198-210.

BAETSLE, L.H., P. DEJONGHE, W. MAES, E.S. SIMPSON, J. SOUFFRIAU, & P. STANER. 1964: Underground Radionuclide Movement. EURAEC-703.

BEETEM, W.A., V.J. JANZER, C.G. ANGELO, & M.C. GOLDBERG. 1962: Summary of Distribution Coefficients for Fission Products Between Ground Water and Granite Rocks, Climax Stock, NTS. U.S.G.S. Technical Letter NTS-13.

BERAK, L. 1963: The Sorption of Microstrontium and Microcesium on the Silicate Minerals and Rocks. UJV-528-63.

BOCHKAREV, V.M., Z.G. ANTROPOVA, & E.I. BELOVA. 1964: Migration of Strontium-90 and Cerium-144 in Soils of Different Texture. Soviet Soil Science 9: 936-938.

BROWN, D.J. 1967: Migration Characteristics of Radionuclides Through Sediments Underlying the Hanford Reservation. ISO-SA-32.

BUNZL, K. 1978: Transport and Accumulation of Radionuclides in the Soil. A Kinetic Model. GSF-Bericht S 527.

DLOUHY, A. 1967: Movement of Radionuclides in the Aerated Zone. In: Disposal of Radioactive Wastes into the Ground. IAEA-SM-93/18, pp. 241-249.

FRISSEL, J.J., & P. REINIGER. 1974: Simulation of accumulation and leaching in soils. Wageningen, Centre for Agricultural Publishing and Documentation.

HAJEK, B.F., & L.L. AMES, Jr. 1968: Trace Strontium and Cesium Equilibrium Distribution Coefficients: Batch and Column Determinations. BNWL-SA-843.

JACKSON, R.E., & K.J. INCH. 1980: Hydrogeochemical Processes Affecting the Migration of Radionuclides in a Fluvial Sand Aquifer at the Chalk River Nuclear Laboratories. NHRI Scientific Series No.104

JACOBS, D.G. 1965: Desorption of Radioiodine from Clays. ORNL-P-1581.

JACOBS, D.G. 1962: Cesium Exchange Properties of Vermiculite. Nuclear Sci. Eng. 12: 285-292.

JANZER, V.J., M.C. GOLDBERG, C.G. ANGELO, & W.A. BEETEM. 1962: Summary of Distribution Coefficients for Fission Products Between Ground Water and Rocks from Project Gnome. IN: Hydrologic and Geologic Studies for Project Gnome. Part IV, U.S.G.S.

MCFARLANE, J.C., K.W. BROWN, & R.R. KINNISON. 1975: In Situ Soil Gamma Analyzer - a New Approach to Determine the Movement of Pollutants in Soils. Soil Science 120: 140-146.

MOLCHANOVA, I.V. 1968: Behavior of Cerium-144, in Various Types of Soil. Tr.Inst.Ekol.Rast.Zhivotn. 61: 4-11.

NISHITA, H., B.W. KOWALEWSKY, A.J. STEEN, & K.H. LARSON. 1956: Fixation and Extractability of Fission Products Contaminating Various Soils and Clays: I. Strontium-90, Ruthenium-106, Cesium-137, and Cerium-144. Soil Science 81: 317-326.

NORK, W.E., & P.R. FENSKE. 1970: Radioactivity in Water - Project Rulison. NVO-1229-131.

NORK, W.E., E.J. FORSLOW, & E.H. ESSINGTON. 1971: Radioactivity in Water, Central Nevada Test Area. NVO-1229-175.

ROCHON, J., D. RANCON, & J.P. GOURMEL. 1980: Recherche en Laboratoire sur la Retention et le Transfert de Produits de Fission et de Transuraniens dans les Milieux Poreux. IN: Underground Disposal of Radioactive Wastes, Proceedings Vol.2, IAEA-SM-243/6, pp. 271-314.

ROUTSON, R.C., G. JANSEN, & A.V. ROBINSON. 1977: ^{241}Am , ^{237}Np , and ^{99}Tc Sorption on two United States Subsoils from Differing Weathering Intensity Areas. Health Physics 33: 311-317.

SELIM, H.M., J.M. DAVIDSON, & P.S.C. RAO. 1977: Transport of Reactive Solutes Through Multilayered Soils. Soil Sci. Soc. Am. J. 41: 3-10.

van GENUCHTEN, M.-Th., & R.W. CLEARY. 1979: Movement of solutes in soil: Computer-simulated and laboratory results. IN: Soil chemistry. B.Physico-Chemical Models. ed. by G.H.Bolt. Amsterdam, Elsevier

WILDUNG, R.E., R.C. ROUTSON, R.J. SERNE, & T.R. GARLAND. 1975: Peracthnetate, Iodide and Methyl Iodide Retention by Surface Soils. BNWL-1950. Pt.2. pp. 37-40.